

Aus den Abteilungen für Mikromorphologie (Prof. Dr. med. dent. Hans LENZ) und für Spezielle medizinische Chemie und Werkstoffkunde (Prof. Dr. phil. Heinrich NEWESLY) des Instituts für Klinisch-Theoretische Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde des Fachbereichs Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde der Freien Universität Berlin.

**Mikrosondenanalysen und elektronenmikroskopische
Strukturuntersuchungen über Metallimprägnation
im menschlichen Dentin unter Amalgamfüllungen**

Dissertation
zur
Erlangung der zahnmedizinischen Doktorwürde
am Fachbereich Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Dr. med. Bernt Rossiwall
aus Mariazell

1976

Aus den Abteilungen für Mikromorphologie (Prof. Dr. med. dent. Hans LENZ) und für Spezielle medizinische Chemie und Werkstoffkunde (Prof. Dr. phil. Heinrich NEWSELY) des Instituts für Klinisch-Theoretische Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde des Fachbereichs Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde der Freien Universität Berlin.

**Mikrosondenanalysen und elektronenmikroskopische
Strukturuntersuchungen über Metallimprägnation
im menschlichen Dentin unter Amalgamfüllungen**

Dissertation

zur

Erlangung der zahnmedizinischen Doktorwürde
am Fachbereich Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

Dr. med. Bernt Rossiwall
aus Mariazell

Referent: Prof. Dr. med. dent. Hans LENZ
Korreferent: Prof. Dr. phil. Heinrich NEWSELY

Gedruckt mit Genehmigung des Fachbereichs
Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde der Freien Universität Berlin

Promoviert am: 26.4.1976



Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Literaturübersicht	3
3. Material und Methoden	8
3. 1. Aufbereitung des Zahnmaterials	8
3. 2. Präparate-Übersicht	9
3. 3. Apparative Methoden	11
3. 3. 1. Rasterelektronenmikroskopie	11
3. 3. 1. 1. Energiedispersive Analyse	14
3. 3. 2. Mikrosonde	15
3. 3. 2. 1. Wellenlängendispersive Analyse	15
3. 3. 2. 2. Einfluß der Oberflächengestalt	16
3. 3. 2. 3. Quantitative Aspekte	17
3. 3. 3. Transmissionselektronenmikroskopie	20
4. Ergebnisse	
4. 1. Dentin-Topographieeffekte	22
4. 2. Abbildungsübersicht	25
4. 3. Dentinpräparat mit Unterfüllung(Präp. 72)	26
4. 3. 1. Übersicht im Licht- und Rasterelektronen- mikroskop	26
4. 3. 2. Detailspekte der Bruchfläche im Raster- elektronenmikroskop	29
4. 3. 3. Energiedispersive Elementanalyse von Stelle "6" aus 4. 3. 1.	34
4. 3. 4. Wellenlängendispersive Einzelunter- suchungen für Ca, (P),Ag,Sn,Zn und (Hg)	37
4. 3. 4. 1. Flächenelementverteilungsbild sowie Elementkompositionsanalyse unmittelbar am Kavitätenboden (Stelle "1" aus 4.3.1.)	37
4. 3. 4. 2. dgl. gegen den Kavitätenboden zu (Stelle "2" aus 4. 3. 1.)	38

4. 3. 4. 3. dgl. in der Randzone (Stelle "4" aus 4. 3. 1.)	41
4. 3. 4. 4. dgl. tief im Dentin (Stelle "5" aus 4. 3. 1. mit scharfer Konzen- trationsgrenze zwischen Pulpendach und Kavität	42
4. 3. 5. Untersuchungen mit dem Transmissions- elektronenmikroskop	45
4. 3. 6. Zusammenfassung für das Präp. 72 mit Unterfüllung	48
4. 4. Dentinpräparat ohne Unterfüllung (Präp. 54).	50
4. 4. 1. Übersicht	50
4. 4. 2. Detailaspekte des Bruchgefüges im Raster- elektronenmikroskop	53
4. 4. 2. 2. dgl. kavitätenbodennahe	53
4. 4. 2. 3. dgl. tief im Dentin außerhalb der makroskopisch sichtbaren Verfärbung	58
4. 4. 3. Transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen	61
4. 4. 4. Wellenlängendispersive Einzelanalysen (Flächenverteilungsbilder z.T. mit Elementkompositionsvergleich)	65
4. 4. 4. 1. Übersicht für leichte bzw. für schwere Elemente am Kavitätenboden	65
4. 4. 4. 2. Einzelanalysen für Sn, Zn (Ca, P, Hg, Ag) am Kavitätenboden	66
4. 4. 4. 3. dgl. in Pulpendachnähe	66
4. 4. 5. Zusammenfassung für das Präparat ohne Unterfüllung	68
4. 5. Aspekte der Rasterelektronenmikroskopie, energie- und wellenlängendispersiven Ana- lysen der gesamten Präparat-Serie (Übersicht)	69
4. 5. 1. Präparat 25	69

	Seite
4. 5. 2. Präparat 30	70
4. 5. 3. Präparat 49	70
4. 5. 4. Präparat 58	71
4. 5. 5. Präparat 83	71
5. Diskussion und klinische Aspekte	73
6. Zusammenfassung	83
7. Schriftenverzeichnis	87
8. Abkürzungsverzeichnis	96



Digitized by the Internet Archive
in 2026

1. Einleitung

Aus amalgamgefüllten Kavitäten vermögen unter gewissen Voraussetzungen Metallionen ins Dentin zu diffundieren. Auf solche Weise hervorgerufene Metallimprägnationen sollen auch für Dentinverfärbungen ursächlich sein.

Bisherige kritische Äußerungen in der Literatur zur Metalldiffusion in das Dentin im Zusammenhang mit Amalgamen lassen aber in der Diskussion weitgehend die Einbeziehung der zugrunde liegenden Morphologie, Ultrastruktur und Elementverteilung im verfärbten Dentin unter Silber- Zinn- Amalgamfüllungen vermissen.

Derzeit lassen sich bereits morphologische Strukturen erfassen, die im Elektronenmikroskop bis in die Größenordnung der molekularen Dimensionen aufgelöst werden und bei Element-Röntgenanalysen mittels Mikrosonden bei $500 \text{ \AA}$ bis $1 \text{ }\mu\text{m}$ liegen. Damit stehen neue Untersuchungsmöglichkeiten der Zahnmorphologie und -Ultrastruktur auch unter Einbeziehung direkter Oberflächenelementanalysen zur Verfügung. Diese Methoden basieren auf der unterschiedlichen Absorption und Streuung von Elektronen, die ihrerseits von der Massenverteilung und Ordnungszahl jener Elemente abhängen, aus denen sich das Dentinmaterial aufbaut.

Bei kombinierter Anwendung von derartigen technischen Möglichkeiten, nämlich einer zerstörungsfreien Multielementbestimmung an Oberflächen-

grenzschichten unter topographischer Zuordnung und ultrastruktureller Mikroskopie, eröffnen sich neue Informationsquellen über Dentin unter Amalgamfüllungen, insbesondere, da sich Ionenaustauschvorgänge in den mikromorphologischen Dimensionen der Dentinstrukturen abspielen.

Aufgabe dieser Abhandlung und Untersuchungen soll es daher sein, bisherige Erkenntnisse mittels ultrastruktureller Untersuchungsmethoden zu ergänzen und synoptisch zu erweitern als Beitrag zur künftigen weiteren Beantwortung der zahlreichen offenen Probleme im Zusammenhang mit der Dentinimprägnation durch Metalle.

2. Literaturübersicht

Eine Sichtung der Literatur zum Problem der Dentinimprägnation und Dentinverfärbung unter Amalgamfüllungen zeigt, daß dieser Fragenkreis im Laufe der Zeit eine sehr unterschiedliche Beurteilung und Bewertung gefunden hat. Bedingt ist dies in erster Linie durch die jeweilige Auffassung von der Struktur der Zahnhartgewebe und den Möglichkeiten, die entsprechenden Untersuchungen durchzuführen.

Schon bald nach der klinischen Verwendung der Amalgame als Füllungsmaterial beschäftigten sich BÖDECKER (1894) und WITZEL (1899) ausführlich mit den unter Amalgamfüllungen auftretenden Verfärbungen des Dentins. Sie grenzten diese metallische Verfärbung von den bei Karies in den Kavitäten und an den Füllungsrandern auftretenden Verfärbungen deutlich ab. Als Ursache der rein metallischen Verfärbung des Dentins wurden metallische Sulfide angesehen. BÖDECKER (1894) glaubte, daß die durch Kontraktion der Dentinfasern (gemeint sind die Odontoblastenfortsätze, von BÖDECKER als Fädchen lebender Materie angenommen) in die Tiefe verlagert werden. WITZEL (1899) nahm an, daß zusätzlich eine Verfärbung durch mechanisches Einpressen von Amalgam in den Dentinkanälen entstände. In ähnlicher Weise wurde in der Folgezeit metallische Verfärbung unter Amalgamfüllungen von vielen Autoren interpretiert (BLACK (1914), BÖHLE (1921), ZETTEL (1922), HOFFMANN (1923), HEILMEIER (1924)). Auch die angeblich in den Dentinkanälen vorhandene Lymphe wurde als Diffusionsweg für Metalle angesehen (APPLEBAUM (1929)). Unter dieser Voraussetzung dürfte eine Verfärbung nur an vitalen Zähnen möglich sein. Gegen die Ansicht des mechanischen Einpressens von Amalgamteilen (WITZEL (1899)) wandte sich HEUSER (1933) und führte die beobachteten Verfärbungen nicht auf Amalgam, sondern auf

Veränderungen des kariösen Dentins zurück, die überwiegend durch Bakterienfarbstoffe und Nahrungsmittel entstehen sollen. Für Verfärbungen im Bereich des sogenannten "Karieskegels" führte er bezugnehmend auf FEILER (1925) strukturelle Dentinveränderungen an.

Histochemische Untersuchungsmethoden und Funkenspektrographie erbrachten neue Einblicke in den Problembereich der Verfärbungen durch Amalgame. So ordnete WENDEBORN (1934) im Dunkelfeld aufleuchtende Gebilde Metallen in den Dentinkanälchen zu und fand funkenspektrographisch einzelne Metalle im Dentin. Ein Befund, der nicht unbestritten blieb. WERNER (1935) verneinte eine gleichmäßige Ausbreitung der Metalle, auch UHLIG (1936) ordnete das metallische Aufleuchten nicht direkt den Dentinkanälchen zu und fand, daß das metallische Aufleuchten stärker zur Pulpa zu auftritt. Der Gedanke, daß die Metalle durch die Pulpa eingelagert werden, fand sich auch bei ROSSBERG (1937) wieder. Ferner konnten auch spektrographisch verschiedene Metalle wie Zinn, Kupfer, Zink, Silber von SCHODNOVER und SOUNDER (1941) festgestellt werden. Auch FIELDS und CHARLES (1950) erfaßten spektrographisch qualitativ sowie semi-quantitativ zunehmend Silber, Zink, Zinn und Blei in Kavitätenboden- und Unterfüllungsnähe. Weitere spektralanalytische Zahnuntersuchungen von KRAUS (1949), d'AMBROSIO (1950) und SCHWARZE (1951) erbrachten Metallanzeigen im Dentin, wobei eine Korrelation zwischen Legierungsbestandteilen und Diffusion im Dentin bestehen soll; hierbei bezog jedoch d'AMBROSIO direkt zwischen Füllung und Pulpa gelegene Dentinbezirke in ihre Untersuchung nicht ein.

Mit Dentinverfärbung und ihrer Topographie sowie ihrer Ätiologie befaßten sich MASSLER und BARBER (1953) in ausgedehnten Studien. Bräunliche Kariesverfärbung wurde dabei von grünlich-schwarzgrauer Metallverfärbung unter-

schieden. Kariöses Dentin erwies sich bei diesen Untersuchungen röntgenstrahlendurchlässiger als normales Dentin. Hingegen stellt sich metallisch verfärbtes Dentin radioopak dar, wie später durch Sondenuntersuchungen von van der LINDEN und AKEN (1973) weiter bestätigt wurde.

Durch experimentelle galvanische Metallwanderung bei H_2S -Behandlung ließen sich ähnliche Verfärbungen wie unter klinischen Amalgamfüllungen erzeugen, für die in vivo als mögliche Sulfidquelle der Speichel erachtet wurde. Auf diese Art erzeugten auch ISAAC und BRUDEVOLD (1957) experimentell dunkle Metallsulfid-Verfärbungen in Zahnhartgeweben.

Die bisher geschilderten Metallnachweise, die auch eine gewisse grobe lokale Zuordnungsmöglichkeit boten, erfolgten histochemisch an präparierten, zumeist entkalkten Schnitten, wobei diese Möglichkeiten der histochemischen Methodik nochmals von ENDERLI (1967) aufgegriffen wurden. Trotz der präparatorisch bedingten Gewebeeränderungen, wie sie bei diesen histochemischen Methoden vorkommen, erlauben sie grundsätzlich eine grobe topographische Zuordnung viel eher, als dies bei den zwar hochempfindlichen Spektralanalysen der Fall ist, die eine Zerstörung der Zahnhartsubstanz voraussetzen (z.B. NIXON et al. (1965), CALONIUS und VISAPÄÄ (1965), BERGENHOLTZ et al. (1965), RETIEF et al. (1971)). Von solchen hochauflösenden Untersuchungen stammten jedoch auch wertvolle Anhaltspunkte für Metallgehalte im menschlichen Dentin von ungefüllten Zähnen (SÖREMARK et al. (1962), BERSIN (1963), RETIEF et al. (1971) u.a.), wie auch von Dentin unter Amalgamfüllungen (MOCKE (1966), SÖREMARK et al. (1968), MOCKE (1971), THOMMEN (1972)).

Erst durch Mikrosondenanalysen ist bei hoher Auflösung eine qualitative sowie zumeist semi-quantitative Elementanalyse mit eng begrenzter lokaler Zuordnung in Zahnhartsubstanzen praktikabel geworden (FRANK et al.(1966), FRAZIER (1967), KATSUJAMA (1968), WEI und INGRAM (1969), KATO et al. (1974), HALSE und HALS (1975, b)). Anfänglich stark unterschiedliche Analysenergebnisse mit Mikrosonden könnten durch verschiedenes Zahnmaterial, präparatorische Maßnahmen, sowie Interpretationsunterschiede der Sondensignale bedingt sein. KATSUJAMA et al. (1968), KATO (1969) berichteten aufgrund ihrer Sondenuntersuchungen über Metallanreicherungen (Zink,Zinn,Quecksilber,Silber,Kupfer) in verfärbtem Dentin unter Amalgamfüllungen. Jedoch keine Silber-, Quecksilber-, Zink- und Kupferanzeigen unter Amalgamfüllungen fanden WEI und INGRAM (1969), sie stellten hingegen ebenfalls Zinn im darunterliegenden Dentin fest.

KUROSAKI und FUSAJAMA (1973) fanden mittels Sondenuntersuchungen im menschlichen dekalzifizierten Dentin unter Amalgamfüllungen Zinn und Zink, aber ebenfalls kein Quecksilber oder Silber. Erst jüngst berichteten HALS und HALSE (1975, a) über Metalleinlagerungen in Sekundärkariesläsionen im Dentin unter Amalgamfüllungen mit Zinn- und Zinkanreicherungen von geschätzten 5 bis 8 %, lokal stark schwankender Konzentration mit analogen Dekalzifizierungen in diesen Läsionen. Somit wurde eine Beziehung zwischen erhöhten Metallkonzentrationen und dekalzifizierten Dentinbezirken hergestellt.

HALSE (1975) ordnete bei einem Dentinpräparat das vorkommende Zinn und Zink unmittelbar peritubulären bzw. tubulären Bereichen zu.

Zusammenfassend geht aus der diesbezüglichen Literatur hervor, daß Untersuchungen des Dentins unter Amalgamfüllungen mittels der materialzerstörungsfreien Mikrosondenanalyse mit Elementverteilungen Metallgehalte in Sekundärkariesläsionen feststellten oder die Anwesenheit von Metallen im verfärbten Dentin charakterisierten.

Die hier vorgelegten Untersuchungen über Dentinverfärbung bei Amalgamfüllungen in klinisch nicht kariösem Dentin sollten daher sowohl eine Zusammenschau der Mikro-Topographie der Verfärbung, der Metallverteilung im Dentin, als auch der sublichtmikroskopischen Feinstrukturen zur Orientierung über diesen Problemkreis ermöglichen.

3. Material und Methoden

3. 1. Aufbereitung des Zahnmaterials

Zur Untersuchung gelangten insgesamt 86 aus parodontalen und prothetischen Indikationen extrahierte menschliche amalgamgefüllte Prämolaren und Molaren, sowie 8 nicht kariöse unbehandelte Kontrollzähne, die mechanisch in Serienschnitte aufbereitet wurden. Das Alter der Patienten schwankte zwischen 12 und 79 Jahren, die Liegedauer der Zinn-Silber-Amalgamfüllungen betrug nach Karteiaufzeichnungen 3 bis 17 Jahre.

In coronal-pulpärer Richtung wurden diese Zähne einerseits mittels auf zahnärztlichen Handstücken montierten Diamantseparierscheiben unter ständiger Berieselung mit physiologischer Kochsalzlösung niedertourig zur Verhinderung von Hitzeentwicklung in Scheiben zerlegt. Andererseits geschah dies besonders schonend niedertourig mit einem Macroto* unter Kochsalzbetropfung. In dieser Weise wurden Zahnscheibchen in gewünschter Stärke von 0,5 bis 2,1 mm bereitet.

Möglicherweise zurückgebliebene Amalgamfüllungen ließen sich aus den Zahnschnitten mühelos herausbrechen, wonach eine Metallverunreinigung durch die Füllung in der weiteren Präparation mit ausreichender Sicherheit unterbunden war.

Zur Gewinnung der tatsächlichen Flächen für die mikroskopische und mikroanalytische Untersuchung wurden die vorliegenden dünnen Scheibchen mit

* Macroto* 2, Metals Research Lim., Melborn, England

Präparationszangen in coronal-pulpärer Richtung gebrochen. Es wurden dadurch Bruchflächen des Dentins erzeugt, die zum Ausschluß präparatorischer Metallverunreinigungen nicht mit Schleifkörpern in Berührung waren.

Die in dieser beschriebenen Art mechanisch aufbereiteten Zähne ließen Unterfüllungen, deren Deckung des Kavitätenbodens generell, Stärke der Dentinbrücke zwischen Kavitätenboden und Pulpendach, sowie grobe Umrisse und Farbtönung des Dentins unter der Amalgamfüllung erkennen.

3. 2. Präparate-Übersicht

Von dem so gewonnenen Zahnmaterial werden im folgenden die Details der klinischen und makroskopischen Befunde einzelner ausgewählter Zähne mit sondenhartem Dentin beschrieben, die zusammen mit den Kontrollpräparaten weiter untersucht werden:

Zahnpräparat Nr. 25: Patientenalter = 52 Jahre; Zahn = 37; Liegezeit der Füllung = 12 Jahre; Vitalitätsreaktion auf CO_2 -Schnee +; Unterfüllung bedeckt weitgehend den Kavitätenboden an der Bruchfläche; tief schwarz-graue zackenförmig begrenzte Verfärbung am Kavitätenboden, die gegen die Pulpa hin ausläuft; Breite der Dentinbrücke zwischen Kavitätenboden und Pulpendach = 2,5 mm; verfärbte zackige Ausläufer enden 1 mm oberhalb des Pulpendaches.

Zahnpräparat Nr. 30: Patientenalter = 51 Jahre; Zahn = 18; Liegezeit der Füllung = 7 Jahre; Vitalitätsreaktion auf CO_2 -Schnee negativ; Bruchfläche ist am Kavitätenboden teilweise mit Unterfüllung bedeckt; graue, mit geringem bräunlichen Ton, diffus vom Kavitätenboden gegen das Pulpen-

dach hin auslaufende Dentinverfärbung; Breite der Dentinbrücke = 2 mm; die Intensität der Verfärbung nimmt vom Kavitätenboden gegen die Pulpa hin rasch ab, scheint aber bis zur unmittelbaren Nähe des Pulpendaches zu reichen.

Zahnpräparat Nr. 49: Patientenalter = 27 Jahre; Zahn = 45; Liegezeit der Füllung = 4 Jahre; Vitalitätsreaktion auf CO₂-Schnee $\bar{+}$; es ist keine Unterfüllung sichtbar; graue saumartige Verfärbung im Dentin (ca. 1 mm Tiefe) entlang des Kavitätenbodens; Breite der Dentinbrücke 1,5 mm.

Zahnpräparat Nr. 54: Patientenalter = 38 Jahre; Zahn = 15; Liegezeit der Füllung = 9 Jahre; Vitalitätsreaktion auf CO₂-Schnee $\bar{+}$; keine Unterfüllung sichtbar; tiefgraue bis braungraue Verfärbung unmittelbar unterhalb des Kavitätenbodens, die gegen die Pulpa hin diffus ausläuft; Dentinbrückenbreite 2,3 mm; die Verfärbungen enden ca. 1,2 mm oberhalb des Pulpendaches.

Zahnpräparat Nr. 58: Patientenalter = 44 Jahre; Zahn = 27; Liegezeit der Füllung = 7 Jahre; Vitalitätsreaktion auf CO₂-Schnee positiv; Unterfüllung am Kavitätenbodenrand, jedoch in Kavitätenmitte keine Unterfüllung sichtbar; tiefgraue bis graubraune aber auch schwarzgraue Verfärbung unter dem Kavitätenboden; die Intensität der Verfärbung nimmt nach 1 mm stark ab und schwindet pulpenwärts rasch diffus.

Zahnpräparat Nr. 72: Patientenalter = 59 Jahre; Zahn = 46; Liegezeit der Füllung = 8 Jahre; Vitalitätsreaktion auf CO₂-Schnee $\bar{+}$; Unterfüllung deckt den Kavitätenboden an der Bruchfläche weitgehend; Verfärbung dunkelgrau bis schwarzgrau, die zackig unregelmäßig begrenzt gegen die Pulpa hin endet; Dentinbrückenbreite 1,9 mm; Ausmaß der Verfärbung ist in Abb.4 ersichtlich.

Zahnpräparat Nr. 83: Patientenalter = 67 Jahre; Zahn = 34, Liegezeit der Füllung = 14 Jahre; Vitalitätsreaktion auf CO_2 -Schnee +; nur teilweise erkennbare Unterfüllung; tiefgraue, pulpenwärts sowohl diffus als auch zackig begrenzte Verfärbung; Dentinbrückenbreite 3 mm;

3. 3. Apparative Methoden

An Bruchstücken von Zähnen, der in 3. 2. (Präparate-Übersicht) genannten Reihe, wurden folgende Untersuchungen durchgeführt und zwar durch gezielte Präparation an identischen Stellen:

- a) die Untersuchung der topographischen Oberflächenstruktur im Rasterelektronenmikroskop mit anschließender energiedispersiver Elementpunktanalyse sowie Elementverteilungsanalyse über die gesamte Präparatfläche;
- b) die Mikrosondenanalyse (wellenlängendispersiv)-nach entsprechender Präparation - mit Punkt-, Linien- und Flächenanalysen;
- c) ergänzende transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen über ultramorphologische Gefüge-Differenzierungen.

3. 3. 1. Rasterelektronenmikroskopie

Das Abbildungsprinzip des Rasterelektronenmikroskops erweist sich für die Erforschung von Zahnhartgewebepreparaten dann als besonders vorteilhaft, wenn diese in für Elektronen undurchstrahlbaren Schichtdicken vorliegen.

Das Rasterelektronenmikroskop ist im Gegensatz zum häufiger verwendeten Transmissionselektronenmikroskop - bei dem Ultradünnschnitte von Elektronen durchsetzt werden - ein "Auflichtelektronenmikroskop". Das Präparat wird dabei durch einen fokussierten Elektronenstrahl zeilenförmig abgetastet,

und der vom jeweils bestrahlten Probenbezirk zurückgestreute Strahlenanteil wird nach elektronischer Verstärkung synchron zeilenförmig als Signal zur Steuerung der Bildhelligkeit einer Oszillographen-Bildröhre zugeführt. (Im englischen Sprachbereich wird der Vorgang des zeilenförmigen Ab tastens als "scanning" = rastern bezeichnet).

Auch bei streng monochromatischer Primärstrahlung entspricht die Energieverteilung der rückgestreuten Elektronen einem breiten Energiespektrum, mit je einem Maximum bei etwa 50 eV (Sekundärelektronen), sowie in der Nähe der Primärenergie (Rückstreuelektronen).

Für die Bildinterpretation und für die Mikroanalyse ist von Bedeutung, daß die rückgestreuten Elektronen aus einer größeren Austrittstiefe her rühren als die Sekundärelektronen, die nur aus sehr oberflächennahen Erregungsbezirken stammen.

Jener Elektronenanteil, der nicht als Sekundärelektronen oder Rückstreuelektronen das Präparat verläßt, d.i. die Differenz Primärelektronen minus (Sekundärelektronen + Rückstreuelektronen), wird als Probenstrom von der Probe abgeleitet. Die Präparatoberfläche muß daher optimal leitend sein. Bei nichtleitenden Objekten (wie Dentin) wird die Leitfähigkeit durch Aufdampfen einer dünnen Metallschicht (Gold,Platin) mittels thermischer Verdampfung im Hochvakuum oder mittels Ionenzerstäubung (Sputtering) erzielt.

Sekundärelektronen-Bilder sind im allgemeinen leichter zu interpretieren, da sie in den Kontrasten der normalen lichtmikroskopischen Abbildung sehr nahe kommen. Auch ihr Auflösungsvermögen (50 bis 200 Å) ist besser als

jenes mit Rückstreuelektronen (0,1 bis 1 μm).

Die rasterelektronenmikroskopische Abbildung eignet sich besonders zur räumlichen bzw. plastischen Darstellung von Oberflächenreliefs, wobei die Tiefenschärfe um den Faktor 300, das Auflösungsvermögen mindestens um den Faktor 10 besser ist als beim Lichtmikroskop.

Durch Kippung und Drehung der Probe unter simultaner Beobachtung am Monitorschirm lassen sich Strukturen in ihrer Dreidimensionalität noch besser beurteilen. Der Informationsgehalt wird so noch gesteigert und Fehlinterpretationen durch Verzerrungen entgegengewirkt.

Zur Dokumentation der im Rasterelektronenmikroskop untersuchten Dentinbruchflächen wurden zahlreiche (175) Mikrophotographien unter einer Mikroskoparbeitsspannung von 15 bis 25 kV und Vergrößerungen von 60 bis 10.000-fach angefertigt.

Neben der Zurückstreuung von Elektronen und ihrer Verarbeitung zu einem Bild ergeben sich aus der Wechselwirkung zwischen Primärelektronen und der Materie der Untersuchungsprobe weitere Informationssignale, die durch elektronische Zusätze in modifizierter Form dargestellt werden können. So erlauben wellenlängen- und energiedispersive Zusatzsysteme zur Analyse von Wellenstrahlung stoffliche Differenzierungen bzw. Elementanalysen der Probenoberflächen bei topographischer Zuordnung auf Grund der durch die Wechselwirkung der Primärelektronen mit der Probe emittierten charakteristischen Röntgenstrahlung, die durch Quantenübergänge angeregte Elektronenzustände (Bohr'sches Atommodell) bestimmt ist. Die charakteristische Röntgenstrahlung ist der Ordnungszahl der entsprechenden Elemente zuzu-

ordnen, wobei die Auftragung nach Einheiten der Wellenlängen (bzw. Wellenzahl) und der Energie gleichwertig möglich ist.

3. 3. 1. 1. Energiedispersive Analyse

Die energiedispersive Analyse mißt die Ionisationsenergie, wenn ein Röntgenquant der charakteristischen Strahlung auf den Detektor trifft. Die entsprechende Einrichtung ist als Zusatzgerät zum Raster-Elektronenmikroskop zu benutzen. Die Einrichtung beinhaltet lithiumgedrifteten Silizium-Halbleiterdetektor, ladungsempfindlichen Vorverstärker, Linearverstärker und Vielkanal-Impulshöhenanalysator. Der möglichst nahe an der Probenoberfläche befindliche Detektor erfaßt einen großen Raumwinkel, wodurch auch noch relativ schwache Röntgenstrahlung, die durch den nur niedrigen Strahlenstrom des Rasterelektronenmikroskops ausgelöst wird, registrierbar ist.

Die entsprechende Zuordnung der Impulshöhen, welche der Energie der Röntgenquanten proportional ist, verschafft eine rasche Information über die qualitative Zusammensetzung auch von nicht polierten Probenoberflächen und zwar fast über das gesamte Elementspektrum. Allerdings ist dabei die spektrale Auflösung niedrig (ca. 160 eV). Das Spektrum ist simultan erhältlich, die Topographie der Probe kann rauh sein, was die Arbeit mit Dentinbruchflächen erst ermöglicht. Die Analysen sind halb-quantitativ.

Für unsere Dentinuntersuchungen wurde das energiedispersive System zur raschen Orientierung über Elementzusammensetzungen auf den elektrisch leitenden Bruchflächen verwendet. Bruchflächen wurden deshalb gewählt, weil die Bruchlinien erfahrungsgemäß vorwiegend längs der Dentinkanäle

verlaufen und so die für das Eindringen von Substanzen (Diffusion) präformierten Wege dargestellt werden. Mit dieser Methode wurden bevorzugt Punktanalysen an kavitätennahen Bezirken und in ca. 50 μm Abständen bis zum Pulpdach fortgesetzt, sowie Punktanalysen an aufgebrochenen Dentinkanälchen durchgeführt. An Dentintubuli wurde im Lumenbereich, an den dichteren peritubulären Hofbezirken und im intratubulären Gewebe gemessen.

3. 3. 2. Mikrosonde

Bei wellenlängendispersiver Analyse wird das Röntgenspektrum durch Beugung an geeigneten Kristallen aufgespalten, während bei der energiedispersiven Analyse das Detektorsystem feststeht, sind bei der wellenlängendispersiven Analyse ziemlich komplizierte Bewegungen des Kristalldetektors erforderlich. Wellenlängendispersive Einrichtungen werden daher häufig als selbständige Einheiten, nicht als Zusatzgeräte, konzipiert.

3. 3. 2. 1. Wellenlängendispersive Analyse

Entsprechend dem Bragg'schen Gesetz $2 d \sin \vartheta = n \lambda$ * erfolgt die Aufspaltung der Röntgenfluoreszenzstrahlung in die einzelnen Anteile mit bestimmter Wellenlänge und Intensität.

Das wellenlängendispersive Verfahren ist dem energiedispersiven System in der spektralen Auflösung mit ca. 10 eV weit überlegen. Die Nachweisgrenze für Elemente ist jedoch sehr von der Oberflächenbeschaffenheit

* d = Netzebenenabstand des Kristalls, ϑ = Glanzwinkel

(Glätte) der Probe abhängig, was bei Dentinbruchflächen nicht der Fall ist und sich so störend äußerte, daß nach energiedispersiver Analyse dieselben Proben wie für eine metallurgische Untersuchung nach Kunststoffeinbettung (100°C, 2.5 atü) geschliffen und mit Tonerde bzw. Diamantpulver poliert werden mußten. Auf die Problematik der Präparation für Dentinproben wird später genauer eingegangen.

Das Spektrum bei wellenlängendispersiven Analysen ist nur sequentiell erhältlich (d.h. Analysen einer Linie nach der anderen), der erfaßte Raumwinkel ist klein und der Abnahmewinkel fest. Auch quantitative Bestimmungen (neben diesen qualitativen Analysen) sind mit Kristallspektrometern dieses Systems prinzipiell möglich.

An glatten, polierten Probenoberflächen ist die Nachweisgrenze der Mikrosonde um 1 bis 2 Zehnerpotenzen besser als für energiedispersive Systeme. Für Metalle bedeutet dies in einer homogenen Matrix unter optimalen Bedingungen eine Nachweisgrenze, die bei etwa 300 ppm liegen könnte. Die Abbildungsqualitäten dagegen sind bei der Mikrosonde weniger ausgeprägt, wenngleich auch prinzipiell vorhanden. Es wurden deshalb auch mit der Mikrosonde über die polierte Probenfläche Punktanalysen vorgenommen, Linienprofile an Übergangszonen gefahren, Elementverteilungsbilder registriert und zur besseren Zuordnung zur Topographie auch von den Schliffproben Kompositions-Sekundärelektronenbilder und Topographiebilder angefertigt.

3. 3. 2. 2. Einfluß der Oberflächengestalt (Topographie)

Aus dem Gebiet von Sondenuntersuchungen am Dentin (KATSUYAMA et al. (1968), WEI et al (1969), KUROSAKI et al. (1973), LINDEN et al. (1973), SUGA (1973),

KATO et al. (1974), HALSE (1975), TAKUMA et al. (1975), HALS et al. (1975)) liegen nur spärliche Informationen über Topographie-Effekte (HALS et al. (1975)) vor. Es war daher notwendig, experimentell die speziellen Auswirkungen der nie völlig glatten Oberflächen des Dentins, wobei die Oberflächenrauigkeiten durch die tubulären Systeme noch verstärkt werden, zu erfassen und die so wichtigen Analysenbeeinflussungen von Topographie-Effekten (Kanten-, Abschattungseffekte) von dadurch möglichen vorgetäuschten oder veränderten Elementanzeigen zu trennen oder zumindest kritischer beurteilen zu können. Diese Effekte lassen sich am besten anschaulich verdeutlichen. Im Kapitel 4. 1. (Dentin-Topographie-Effekte) werden daher diese methodisch konzipierten Ergebnisse zu diesen Beeinflussungen übersichtlich zusammengestellt. Die Untersuchung dieser Probleme ging Hand in Hand mit den Versuchen und Überlegungen einer semi- bzw. quantitativen Erfassung der Elemente in der Dentinmatrix.

3. 3. 2. 3. Quantitative Aspekte

Quantitativer Elementnachweis mittels Mikrosonde:

An verschiedenen Stellen der gleichen Probe austretende Röntgenstrahlung läßt sich in Beziehung bringen zu der dort befindlichen Stoffmenge. Unter der Voraussetzung, daß die Topographie der Vergleichsstellen adäquat ist, wird eine semi-quantitative Aussage (von mehr- bzw. weniger Anzeige) möglich. Kritischer jedoch ist die Erfassung von Absolutwerten anzusehen. Die Anzeige der Probe kann nicht in eine einfache Relation zur Anzeige des gleichen Elements im Reinstandard (bekannte Elementkonzentration in bekannter Matrix) gesetzt werden. Dies ist deshalb nicht möglich, da der ausgetretene Röntgenstrahl in der Probe je nach Matrix und Elementver-

teilung Veränderungen unterworfen ist, und folgende Korrekturen zur Gewinnung von exakten quantitativen Daten erforderlich werden:

- a) Der Röntgenstrahl wird je nach seinem Ort des Entstehens beim Austritt aus der Probe unterschiedlich absorbiert, d.h. die Röntgenstrahlenmenge, die aus dem Erregungsbezirk austritt, ist nicht mit der der angeregten Menge identisch, da auch eine Absorption durch die Materie der eigenen Probe erfolgt bevor die Röntgenstrahlen die Probe verlassen. Dieses Phänomen ist durch eine Absorptionskorrektur auszugleichen.
- b) Primärelektronen regen nicht nur spezifische Elemente an, es können vielmehr Röntgenstrahlen aller angeregten Probenelemente entstehen. Ferner regen Elemente mit hoher Ordnungszahl durch ihre härtere Röntgenstrahlung Elemente niederer Ordnungszahl vor ihrem möglichen Austritt aus der Probe an. Zur genauen Quantifizierung ist deshalb dieser Effekt durch eine Fluoreszenzkorrektur auszugleichen.
- c) Eine weitere Korrektur besteht in der Atomnummernkorrektur (Atomordnungszahlkorrektur), die wegen der Abhängigkeit der Röntgenstrahlenausbeute von der Ordnungszahl erforderlich ist.

Erst auf Grund dieser Korrekturen könnten die Signale der austretenden Röntgenstrahlen quantifiziert werden. Für Elementbestimmungen im Dentin ergeben sich daraus folgende Schwierigkeiten:

Von der Topographie her läßt sich nur eine sehr bedingt ebene Schlifffläche herstellen. Die Lumina der Dentintubuli, die auch durch Ablagerung von mineralischen Material obliteriert sein können, die kompakteren peritubulären Hofbezirke um das Lumen und unterschiedliche Härte des Dentins durch regressive Veränderungen und Demineralisationsvorgänge ge-

statten keine ebenen Schlißflächen. Dieser Umstand führt zu Kanten- bzw. Abschattungseffekten, die eine genaue Absorptionskorrektur nicht erlauben.

Diese Topographieeffekte haben sich durch Schliff und Politur des Dentins mittels Diamantpulver anstelle von Tonerde verbessern lassen. Peritubuläre Wälle treten danach nicht mehr in solch störender Weise in Erscheinung, jedoch ist eine Beeinflussung der Signale bei Probenunebenheiten wegen des unterschiedlichen Röntgenstrahlenaustrittswinkels praktisch unvermeidbar.

Ein bedeutender Fortschritt für quantitative Aussagen bezüglich der Metallgehalte im Dentin wäre mit Vergleichsproben (Standards) zu erreichen, die sowohl der Matrix der Dentinproben entsprechen müßten als auch die zu prüfenden Metalle in bekannter Konzentration homogen in dem selben Lagerungsmodus aufweisen müßten. Eigene Versuche, durch homogene Einlagerung von bekannten Metallkonzentrationen in künstlich hergestellter Apatitmasse zu Standards zu gelangen, scheiterten bislang. Eine Einbeziehung der organischen Phase bei solchen Standards ist kaum zu erreichen.

Auch natürliche Minerale scheinen für den Dentinvergleich unzureichend.

Bei Aussagen über absolute Zahlenwerte ist man somit auf mehr oder weniger grobe Schätzungen auf Grund von Erfahrungswerten angewiesen. Der Vergleich von Konzentrationen auf derselben Probe an gleichen Strukturen, die keine stärkeren Unebenheiten zeigen, ist jedoch realistisch. Dies kann einerseits durch Elementflächenverteilungsbilder an Konzentrationsgrenzen ausgewertet werden, andererseits durch vergleichende Punktanalysen bei kon-

stanter Einzählzeit im auftretenden Unterschied der Signaleinzählrate.

Für folgende Elemente wurde dieses Verfahren bei unseren Dentinuntersuchungen angewendet:

Ca (Calcium), P (Phosphor), Sn (Zinn), Zn (Zink), Ag (Silber),
Hg (Quecksilber).

Die Auswertungsprinzipien wurden zur Erfassung von Konzentrationsdifferenzen sowohl mittels energiedispersiven- wie auch wellenlängendispersiven Analysatoren herangezogen. Die Meßstellen an den Proben waren Kavitätenbodendendingrenzen, Verfärbungsgrenzen, Pulpendachregion und strukturbedingte Grenzflächen, zu denen die Dentintubuli zu rechnen sind mit intra-, peri- und intertubulären Strukturzonen.

3. 3. 3. Transmissionselektronenmikroskopie

Transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen:

Fixierte, vom Kavitätenboden bis zur Pulpa gelegte Dentinschnitte wurden mit physiologischer NaCl-Lösung ausgewaschen, in einem Phosphatpuffergemisch (pH 7,2) zumindest 20 Stunden gelagert, in Veronal-Azetat-gepufferter, isotonischer OsO_4 -Lösung nachfixiert, danach mit physiologischer NaCl-Lösung gespült und in aufsteigender Alkoholreihe entwässert und sodann in Mikropal-Styrol übergeführt. Nach vollendeter Polymerisation (bis 36 Stunden bei 60°C) wurde das eingebettete Dentin im rechten Winkel zur vorliegenden Längsachse geschnitten und so in Gelatine kapseln eingebettet, daß nach abermaliger Kunststoffeinbettung und Polymerisation die Anspitzung der Präparate senkrecht bis schräg zur tubulären Verlaufsrichtung für die Gewinnung der Ultradünnschnitte erfolgen konnte.

Die mit einem Diamantmesser hergestellten Schnitte (ca. 600 bis 700 Å Stärke) wurden in Alkohol aufgefangen, in Chloroformdampf gestreckt und sodann auf mit Formvar beschichteten Kupfernetzen aufgebracht.

Die Untersuchung der Ultradünnschnitte erfolgte unter 3.000 bis 30.000-facher Vergrößerung.

Sämtliche Schnitte wurden auch ohne Nachkontrastierung untersucht, da Entmineralisierungen durch dafür verwendete Schwermetallsalze (z.B. Uranylazetat) nicht ausgeschlossen werden können. Grundsätzlich ermöglicht die Nachkontrastierung eine deutliche Darstellung organischer Strukturen.

Die transmissionselektronenmikroskopischen Untersuchungen erlauben auf Grund des hohen Auflösungsvermögens die ergänzende ultrastrukturelle Beobachtung und Analyse jener Dentinstrukturen in ihren Einzelheiten, die im Rasterelektronenmikroskop in ihrer Gesamtheit plastisch anschaulich hervortreten.

4. Ergebnisse

4. 1. Dentin-Topographieeffekte

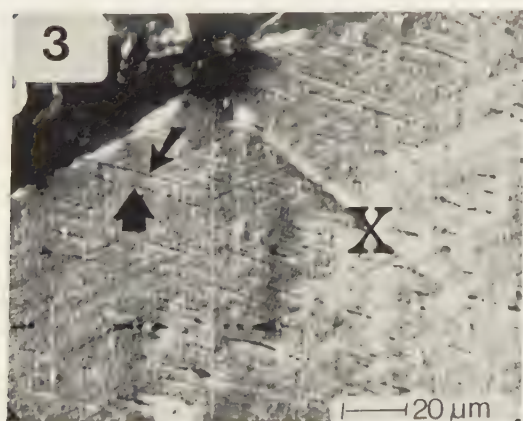
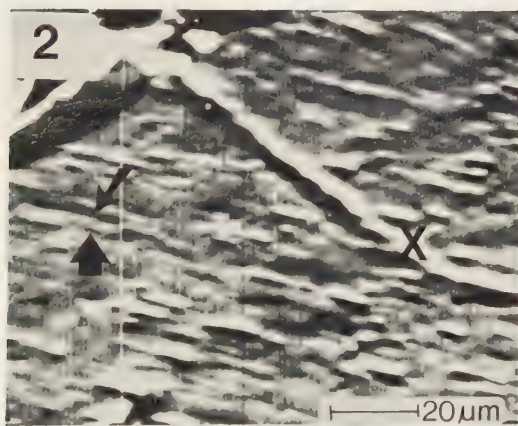
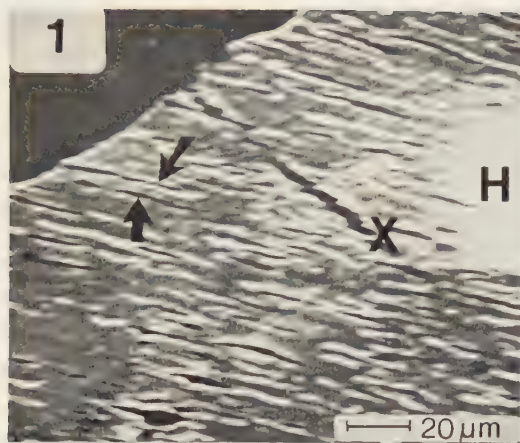
Bei der Interpretation der Ergebnisse der rasterelektronischen Arbeiten und Mikrosondenanalysen wird besonderer Wert auf die Prüfung und Ausschaltung von Artefakten, insbesondere bei Topographie-Effekten, gelegt.

Die folgenden Abbildungen 1 bis 3 sind deshalb zum besseren Verständnis als methodische Überleitung der Besprechung der einzelnen Dentinpräparate vorangestellt.

Man kann den Topographieeinfluß auf Materialanzeigen, die ihrerseits zu Fehlinterpretationen Anlaß geben können, verdeutlichen, wenn unter Beibehaltung der identischen Dentinstelle die elektronische Signalverarbeitung variiert wird.

Das Kompositionsbild einer Dentinschlifffläche Abb. 1 (0V 600-fach, $0,6 \times 10^{-9}$ Amp., 25 kV) läßt schwere Elemente heller im Vergleich zu dunkleren Kontrasten (leichte Elemente) erscheinen. Den länglich verlaufenden Strukturen, die den Dentinkanälchen entsprechen, erwecken vorerst den Eindruck, den Kanalzonen seien schwerere Elemente zuzuordnen. In dieser Abbildung wird deutlich, daß diese Stränge an manchen Kanälen auftreten, jedoch an anderen auch fehlen ($\longrightarrow$): (x = eine Bruchstelle, H = hellerer Bezirk durch leichte Unebenheit bedingt).

Im Topographiebild (Abb.2) mit Rückstreuelektronen (RE) (0V 800-fach, $0,6 \times 10^{-9}$ Amp., 25 kV) sind diese Kanalstrukturen plastisch als Ober-



flächenrasterbild (Auflösung ca. 0,1 bis 1 μm) dieser Dentinschliff-
fläche dargestellt. Durch die Abhängigkeit des Rückstreu-Koeffizienten
von der Flächenneigung bei Rückstreu-Elektronen-Bildern treten starke
Schatteneffekte auf, die klar zeigen, daß an den Lumina Kanten vor-
liegen, die von Wällen gegen die intertubuläre Substanz abgesetzt sind.

Ein Sekundärelektronen (SE)-Bild mit einem Auflösungsvermögen von ca.
50 bis 200 Å (0V 600-fach, $0,6 \times 10^{-9}$ Amp., 25 kV) in Abb. 3 läßt eben-
falls noch Dentinunebenheiten derselben Dentinstelle erkennen, die zu
leichten Kontrastunterschieden entlang der Kanäle führen. Das Bild ähnelt
jedoch den lichtmikroskopischen Bildern mehr, weshalb eine Interpretation
nach gewohnten Kriterien leichter fällt.

Zusammenfassend ergibt sich, wie Abb.1 ($\longrightarrow$) zeigt, daß die Signalan-
zeige auf kleinstem Raum an Kanälen stark schwankt. Diese Anzeigen sind
wohl weitgehend Topographieeffekten zuzuschreiben und nicht tatsächlich
vorhandenen lokal begrenzten Anreicherungen schwerer Elemente. Der Ver-
gleich der Kontraste des Topographiebildes und des Sekundärelektronen-
bildes kann in diesem Sinn gedeutet werden. Diese Interpretation findet
weitere Stützung durch Linienprofile und Punktanalysen in Dentinkanal-
bezirken für Ca, Sn, Zn, die alle nur geringste (an der Auflösungsgrenze
gelegene) Konzentrationsunterschiede aufzeigten, die für solche im Kompo-
sitionsbild sehr deutlich hervortretende Anzeigen keine Erklärung bieten.

Topographieeffekte auf Sondensignale und ihre Interpretation in Bezug
auf Metallanzeigen müssen also stets geprüft werden und sind grundlegende
Voraussetzungen für die sinnvolle Auslegung der Ergebnisse; dies gilt
auch für quantitative Analysen.

4. 2. Dentinpräparate - Abbildungsübersicht

Aus der gesamten Untersuchungsreihe seien vorerst zwei typische Fälle von Dentinimpragnation herausgegriffen und beispielhaft bildlich dargestellt, weil eine ausführlichere Bilddokumentation aller Ergebnisse der verschiedenen Untersuchungsmethoden den Rahmen dieser Zusammenstellung übersteigt. Die Gesamtergebnisse der untersuchten Präparate folgen im Anschluß an die Einzeldarstellungen. Bei den beiden vorangestellten Dentinpräparaten handelt es sich um Zahnpräparat 72 (Abb. 4 bis 29) mit Unterfüllung und mit bloßem Auge deutlich zackig markierten, scharf abgegrenzten Verfärbungen, und dem Präparat 54 (Abb. 30 bis 42) ohne Unterfüllung mit diffus gegen die Pulpa auslaufenden grauen Verfärbungen.

4. 3. Dentinpräparat mit Unterfüllung (Präparat 72)

4. 3. 1. Übersicht im Licht- und Rasterelektronenmikroskop

Abb. 4: Auflichtaufnahme der Bruchfläche des Präparates 72 (0V 50-fach).

KB = Kavitätenboden

PD = Pulpendach

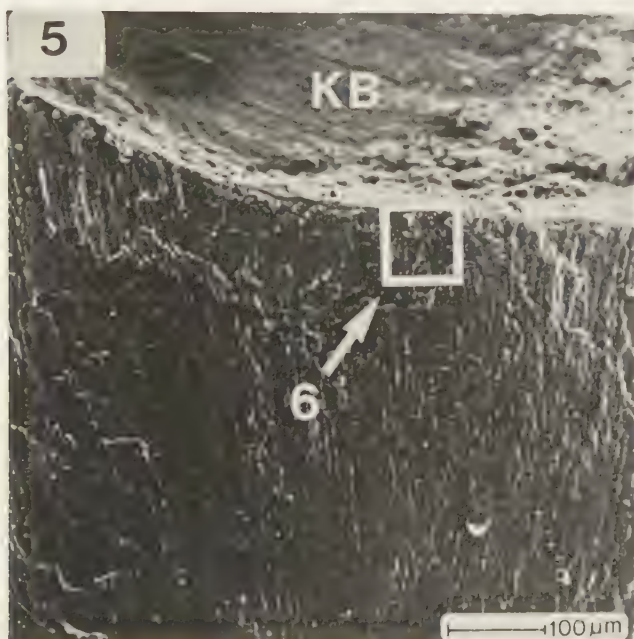
Die makroskopisch mit bloßem Auge erkennbare Verfärbungsgrenze tritt deutlich hervor. Helle Flecken (F) am KB rühren von Unterfüllungsresten her. Mit 1 bis 5 sind jene Analysenareale eingetragen, von denen Bilddokumentationen nachfolgend gezeigt werden.

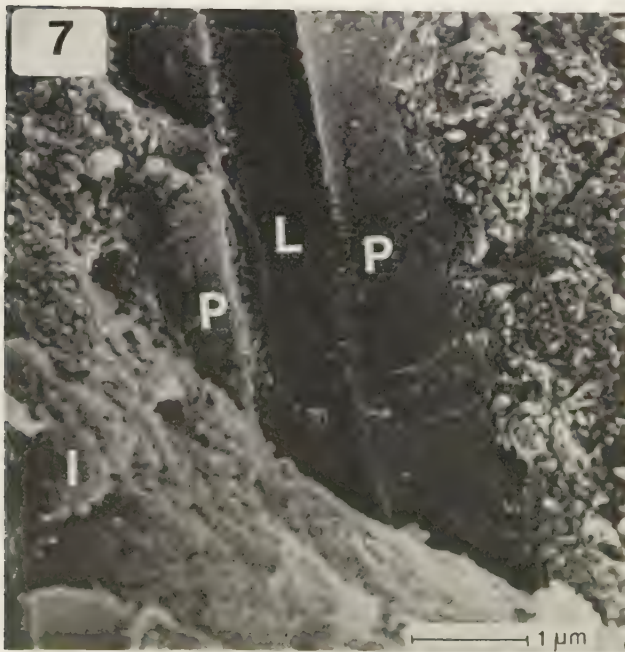
Abb. 5: REM-Bild (0V 100-fach, 25 kV) aus dem Gebiet 1 der Abb. 4.

Mit der Stelle 6 ist das Areal der Multielementbestimmungsbilder (in Abb. 12 bis 14 dargestellt) eingetragen. Die große Tiefenschärfe des REM-Bildes erlaubt eine rasche Übersicht über die Topographie der Bruchfläche für gezielte lokale stärkere Vergrößerungen. Die Aufnahme läßt sowohl die Bruchfläche und jenseits der Kante auch den Kavitätenboden überblicken. Das Gefügebild der Bruchfläche weist schon unter solch geringer Vergrößerung starke Variation auf.

Vergrößerung der Abbildungen:

Die Vergrößerungsangaben (0V) der einzelnen Abbildungen beziehen sich auf die Originalaufnahmen. Die realen Bildvergrößerungen sind aus dem jeweils eingezeichneten Maßstab ersichtlich.





4. 3. 2. Detailspekte der Bruchfläche im Rasterelektronenmikroskop

Abb. 6: REM-Bild (0V 1.000-fach, 25 kV) der Dentinbruchfläche aus dem Areal 1 der Abb.4. Es zeigen sich unterschiedlich erscheinende Kanäle (z.T. ohne peritubuläre Hofbezirke, warzig-knollig konturierte Lumina, bröckelige intertubuläre Zwischensubstanz) und ein in etwa der Norm entsprechender Tubulus im eingerahmten Bezirk.

—————> = Tubulusveränderungen
x = locker aufgelagertes Bruchgeröll

Abb. 7: REM-Bild (0V 10.000-fach, 25 kV) des Ausschnittes aus Abb.6 zeigt einen Dentinkanal mit offenem Lumen (L) mit einem Durchmesser von ca. $0,8 \mu\text{m}$ mit ausgeprägter peritubulärer dichter Hofzone (P), die in ihrer Breite stark variiert. Die intertubuläre Substanz (I) ist rauher und stärker aufgelockert als der peritubuläre glattere Hofbezirk, der sich durch eine relativ homogene zylindrische Zone deutlich absetzt.

Abb.8: REM-Bild (0V 3.000-fach, 25 kV) aus Stelle 3 der Abb.4. Aufgelockertes, bröckeliges intertubuläres Dentin, das unregelmäßige Bruchflächenmorphologie zeigt. Stärker unregelmäßiges Bruchgefüge ist im Bild links erkennbar, der Kanal (K) mit ausgeprägter peritubulärer Matrix ist hingegen von kompakterer Gestalt. Der Kanal (A), dessen peritubuläre Struktur bröckelig zerfallen ist, zeigt einen Ausguß mit kristallinem Charakter. Das Erscheinungsbild variiert auf engstem Raum, innerhalb weniger μ m stark.

Abb.9: REM-Bild (0V 10.000-fach, 25 kV) nahe dem Gebiet aus Abb.8. Eine körnig-kristalline Masse scheint das Tubuluslumen (T) weitgehend auszufüllen. Ein feiner Spalt ($\longrightarrow$) rechts im Bild ist als Bruchartefakt zu werten. Das intertubuläre Gefüge (x) weist auf Abbauvorgänge hin. Die stark schwankende Breite des peritubulären Hofbezirkes mit körnig aufgelockerter Struktur spricht für Ab- bzw. Umbauvorgänge. Die klare Grenze zur intertubulären Matrix ist teilweise aufgehoben. Es handelt sich um einen sklerotisierten Tubulus.





Abb. 10: REM-Bild (0V 1.000-fach, 25 kV) des Areal 3 aus Abb.4 zeigt bröckelig aufgelockerte intertubuläre Zonen nicht unweit des Gebietes aus Abb.8. Peritubuläre Hofbezirke treten teils nicht mehr hervor. Die Anzahl der Kanäle erscheint bruchbedingt vermindert. (K) zeigt einen relativ normal imponierenden Kanal neben massiv sklerotisch ausgefüllten Kanallumina (→).

Abb.11: REM-Bild (0V 3.000-fach, 25 kV) aus der Stelle 5 in Abb.4 knapp außerhalb der stark verfärbten Dentinzone; die Kanäle scheinen hier reliefbedingt dichter zu liegen, die Lumina sind von ausgeprägten peritubulären Höfen umgeben. Die Grenzen zwischen peritubulärer dichter und homogener Matrix sind klar von den rauhen intertubulären Gefügen abgesetzt. Die Wände sind teils homogen mit glatten Kanten (0), teils jedoch noch kristallin "warzig" umsäumt. (siehe:→)

Um- bzw. Abbauerscheinungen treten hier deutlich weniger als in Abb. 8, 9 und 10 in Erscheinung.

4. 3. 3. Energiedispersive Elementanalyse von Stelle "6" (Abb.5)
aus 4. 3. 1.

Abb. 12: Energiedispersives Punkt-Elementanalysen-Diagramm (Kevex-Ray Analysator). In der Vertikalen ist die Intensität, in der Horizontalen die Energie (eV) folgender Peaks dargestellt:

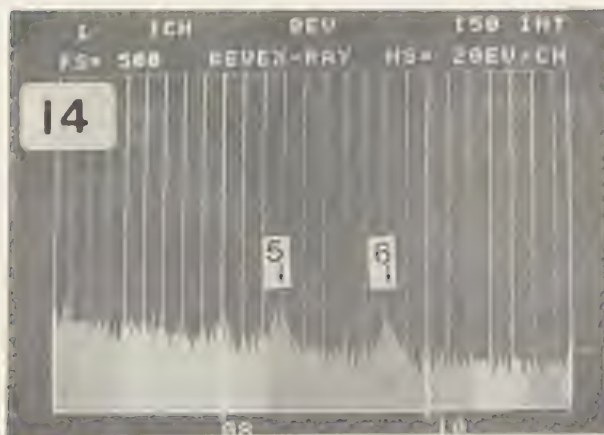
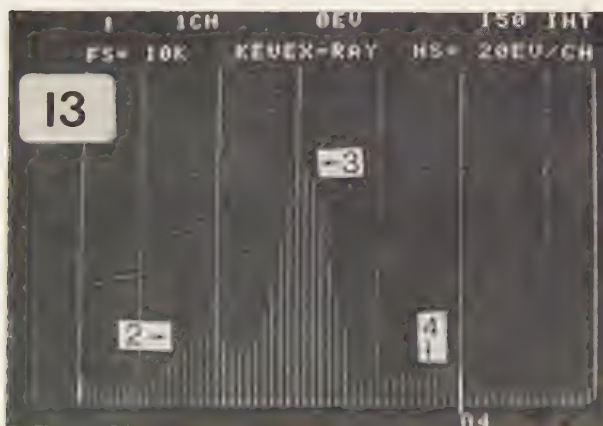
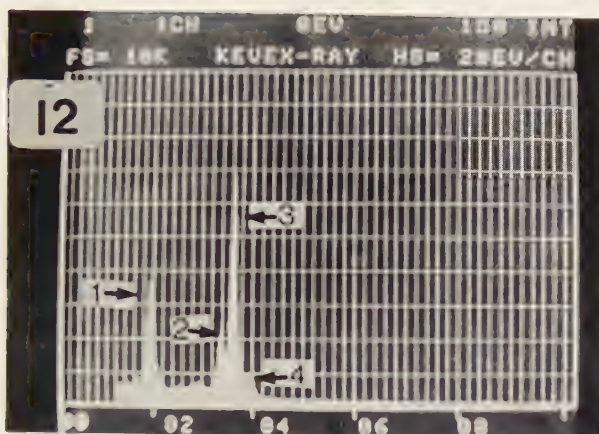
1.P - Peak $K\alpha_1$ = 2,01	4.Ca - Peak $K\beta_1$ = 4,01
2.Sn - Peak $L\alpha_1$ = 3,44	5.Zn - Peak $K\alpha_1$ = 8,64
3.Ca - Peak $K\alpha_1$ = 3,69	6.Zn - Peak $K\beta_1$ = 9,57

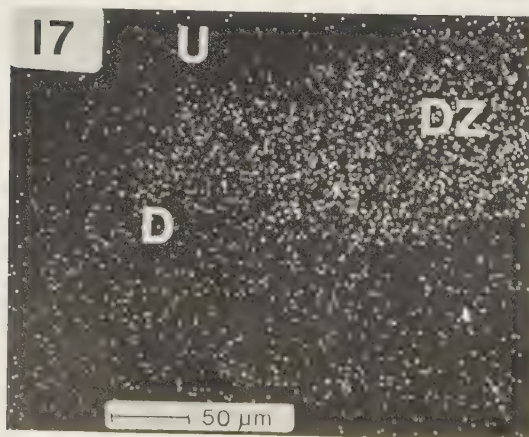
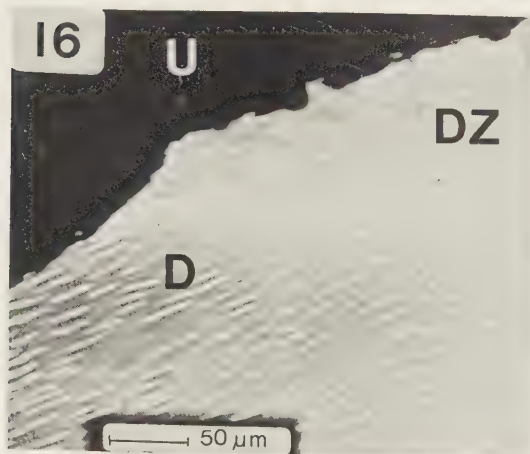
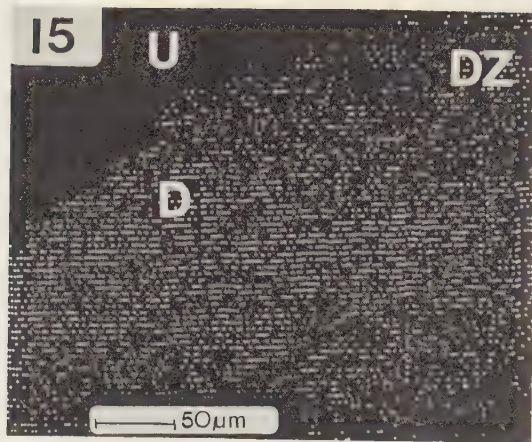
Ag-, Hg-Anzeigen sind negativ

Abb. 13: Sie zeigt ein gespreiztes Spektrum (0,3 bis 0,4 eV) im Bereich der Peaks für Sn 2, Ca 4 und Ca 3. Der Peak für Sn ist auf diese Weise im gespreizten Spektrum klarer von der Schulter des $Ca\alpha_1$ -Peaks abgesetzt.

Abb. 14: Sie zeigt das gespreizte Spektrum für den Bereich 0,8 bis 10 eV, in dem die Peaks für Zn $K\alpha_1$ (5) und Zn $K\beta_1$ (6) liegen. Die Peaks überragen nur schwach den Untergrund und erlauben deshalb keine genügend sichere Aussage.

Diese Multielementbestimmung ermöglicht eine rasche Orientierung zur qualitativen Erfassung von Elementen, wenn sie in genügender Konzentration vorliegen. Quantitativ ergeben sich bei gleichbleibender Einzählzeit durch die unterschiedlichen Einzählraten gewisse Anhaltspunkte. Ein Konzentrationsunterschied von Elementen im peri-, inter- oder intratubulären Abschnitt ist nicht faßbar.





4. 3. 4. Wellenlängendispersive Einzeluntersuchungen: Ca, (P), Ag,
Sn, Zn, (Hg)

4. 3. 4. 1. Flächenverteilungsbild sowie Elementkompositionsanalyse
unmittelbar am Kavitätenboden (Stelle "1" der Abb. 4
aus 4.3.1.)

Abb. 15: Flächenverteilungsbild CMD (concentration mapping distribution)
für Calcium ($K\alpha_1$, 0V 300-fach) eines Dentinbezirkes gegen den Kavi-
tätenboden zu. Ein Areal von 50 bis 200 μ m Tiefe zeigt relativ scharf
abgegrenzte lokale Calciumverminderung.

DZ = demineralisierte Zone

U = Untergrund, D = Dentin

Abb. 16: Kompositionsbild derselben Stelle wie in Abb.15 (0V 300-fach,
25 kV, 1.15×10^{-8} Amp.). Das Ca-ärmere Gebiet weist vermehrt
schwere Elemente auf.

DZ = demineralisierte Zone

U = Untergrund, D = Dentin

Abb. 17: Flächenverteilungsbild für Sn ($L\alpha_1$, 0V 300-fach, 25 kV,
 1.15×10^{-8} Amp.) analoger Stelle zeigt Sn-Zuordnung für diesen
Ca-armen Bezirk. Wo Calcium (Ca) wieder zunimmt (entspricht auch
morphologisch einem strukturell weniger veränderten Abschnitt)
endet dieser Sn-Konzentrationsherd.

Zn-, Ag-, Hg-Anzeigen sind an diesen Stellen negativ.

U = Untergrund, D = Dentin

DZ = demineralisierte Zone im Dentin

4. 3. 4. 2. Flächen-Elementverteilungsbild sowie Elementkompositionsanalyse gegen den Kavitätenboden (Stelle "2" aus 4.3.1.)

Abb. 18: Kompositionsbild (0V 300-fach, 25 kV, 1.15×10^{-8} Amp.) aus Stelle 2 der Abb. 4 zeigt Konzentrationsanhäufung schwerer Elemente in unmittelbarer Kavitätenbodennähe (von ca. 50 bis 200 μm Breite).

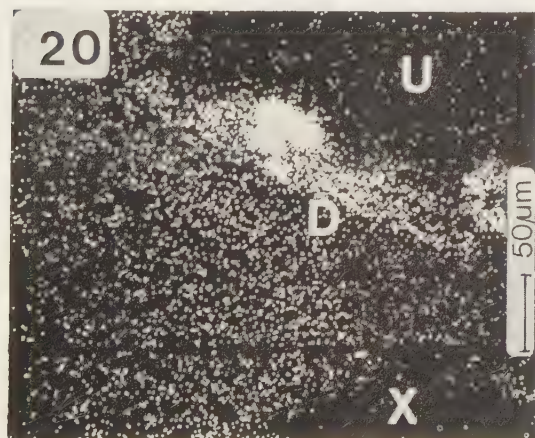
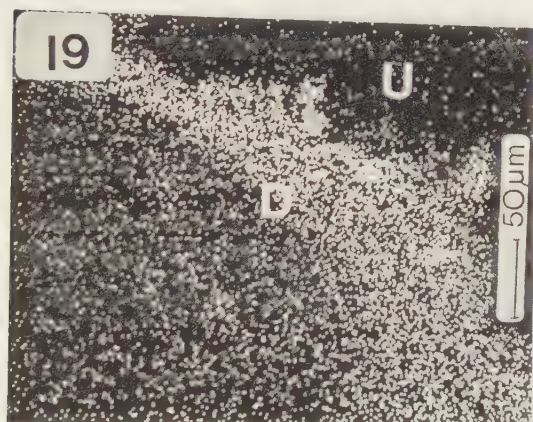
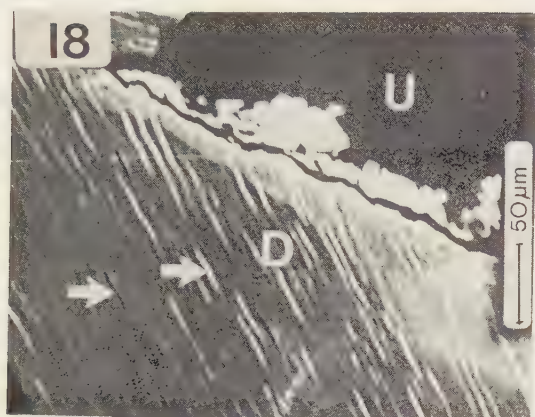
Die Problematik von "hellen" und "dunklen" Kanälen wurde in extenso in Abb.1 bis 3 ausgeführt. Sie ist z.B. an jenen Kanälen ($\longrightarrow$) deutlich sichtbar.

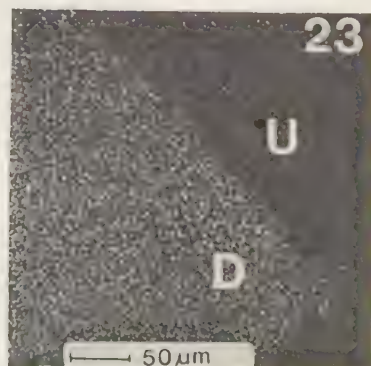
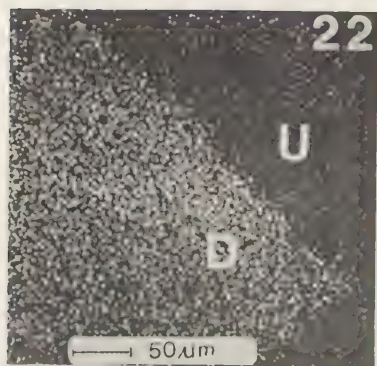
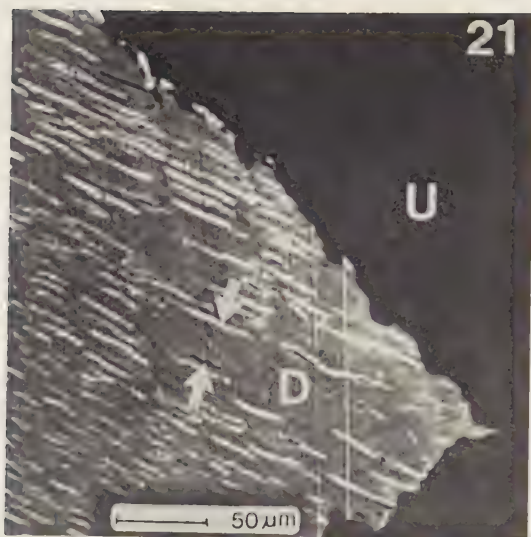
Abb. 19: Elementflächenverteilung für Zn ($K\alpha_1$, 0V 300-fach, 1.15×10^{-8} Amp.) derselben Lokalisation wie in Abb.18. Es zeigt sich eine ausgeprägte Zn-Konzentration, die sich pulpenwärts entsprechend der Verfärbung wie in Abb. 25 fortsetzt.

U = Untergrund

D = Dentin

Abb. 20: Elementflächenverteilungsbild für Sn ($L\alpha_1$, 0V 300-fach, 1.15×10^{-8} Amp.) der Lokalisation wie in Abb.18 und Abb.19. Im Areal (X) ist wenig Sn vorhanden, dafür antagonistisch reichlich Zn. Das ausgeprägte Sn-Band ist schmal (ca. 50 μm) und verliert sich nach 250 μm völlig.





4. 3. 4. 3. Flächen-Elementverteilungsbild sowie Elementkompositionsanalyse in der Randzone (Stelle "4" der Abb.4 aus 4.3.1.)

Abb. 21: Kompositionsbild (0V 300-fach, 25 kV, 1.15×10^{-8} Amp.) der Stelle 4 aus Abb. 4. Wiederum treten hell- und dunkelumrandete Kanalstrukturen ($\longrightarrow$) hervor, die größtenteils der Topographie zuzuschreiben sind und nicht primär Konzentrationen schwerer Elemente folgen.

D = Dentin

U = Untergrund

Abb. 22: Elementflächenverteilungsbild analog der Abb.21 für Sn ($L\alpha_1$, 0V 300-fach, 25 kV, 1.15×10^{-8} Amp.).

D = Dentin

U = Untergrundrauschen = helle Punkte auf Leerfläche.

Die Zinnanzeige ist annähernd homogen über die Dentinfläche verteilt.

Abb. 23: Elementflächenverteilungsbild analog der Abb.21 und 22 für Zn ($K\alpha_1$, 300-fach, 25 kV, 1.15×10^{-8} Amp.).

D = Dentin

U = Untergrund auf Leerfläche

Auch Zink ist über die Dentinfläche praktisch homogen verteilt.

Dieses kavitätenbodennahe Areal zeigt Sn- und Zn-Konzentrationen an gleicher Stelle bis in eine Tiefe von ca. 150 μm . Weiter pulpenwärts allerdings tritt alleinige Zn-Anzeige in der Dentinmatrix auf.

4. 3. 4. 4. Flächen-Elementverteilungsbild sowie Elementkompositionsanalyse tief im Dentin (Stelle "5" in Abb.4 aus 4.3.1.) mit scharfer Konzentrationsgrenze zwischen Pulpdach und Kavität

Abb. 24: Kompositionsbild (0V 300-fach, 25 kV, 1.15×10^{-9} Amp.) von Stelle 5 aus Abb.4. Im oberen Bildteil besteht sowohl hellerer Untergrund wie auch in etwa demselben Ausmaß hellere Stränge entlang der tubulären Strukturen als im unteren Abschnitt. Die helle Begrenzungslinie ($\longleftrightarrow$) folgt der Stufe, die zwischen dem stark verfärbten, weicheren Dentin und daran schließendem härteren Dentin durch Schleifen und Polieren hervortritt (Topographieeffekt). Die in summa gesehene hellere Zone im weicheren Dentin spricht für Metellanreicherung.

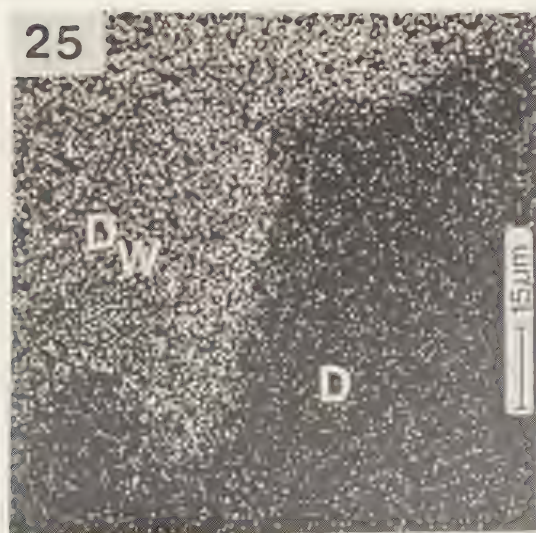
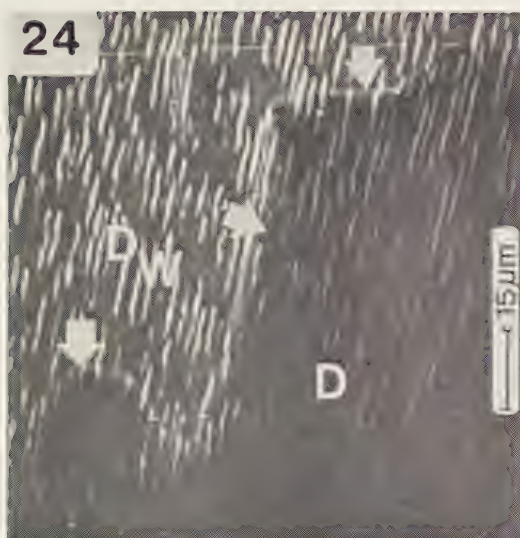
D_w = weicheres Dentin

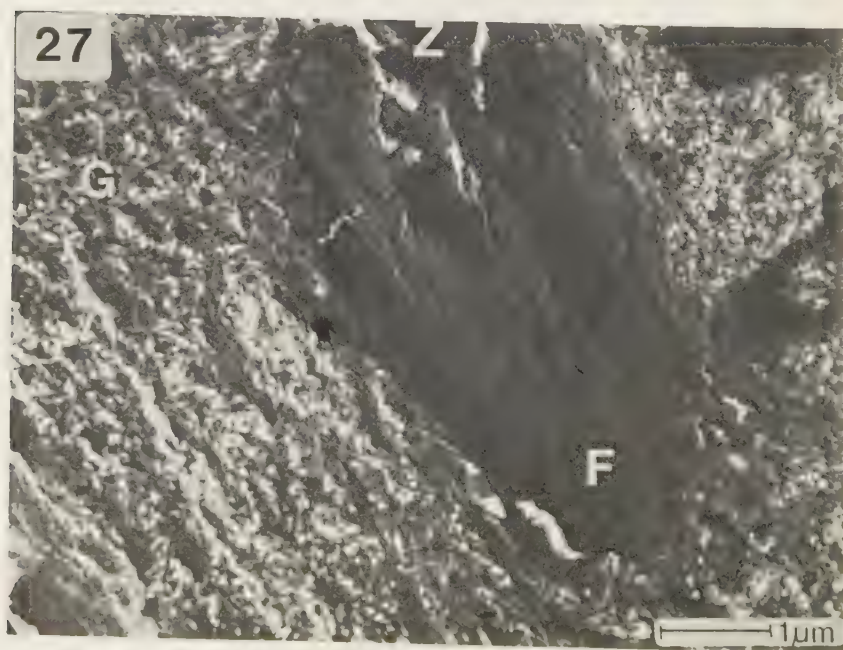
D = Dentin

Abb. 25: Das identische Areal der Abb.24 als Zn-Elementflächenverteilungsbild ($K\alpha_1$, 0V 300-fach). Zn folgt exakt der Kontur, die auch im Kompositionsbild für schwere Elemente in Erscheinung tritt und ist homogen verteilt. Auch Punktanalysen an dieser Stelle ergeben keine spezielle Zuordnung zu tubulären Strukturen. Pulpwärts von dieser scharfen Zinkdemarkationslinie sind keine erhöhten Metallkonzentrationen mehr erfaßbar.

D = Dentin

D_w = weicheres Dentin





4. 3. 5. Untersuchungen mit dem Transmissionselektronenmikroskop

In den nachfolgenden Abb. 26 bis 29 sind transmissionselektronenmikroskopische Mikroaufnahmen von Dentinultrastrukturen dargestellt, deren Auflösung über der des REM liegen.

Abb. 26: TEM-Bild (OV 4.000-fach, 80 kV) der Stelle "2" der Abb. 4 aus 4.3.1. Die Dentingrundsubstanz (G) erscheint im Gegensatz zum Normaldentin stark aufgelockert. Die Dentinkanäle sind obliteriert durch Bildung von peritubulären Dentin und intratubulären Mineralisationen (M). Die Abgrenzung der peritubulären Zonen von der intertubulären Grundsubstanz ist nicht stark ausgeprägt. Die aufgelockerten intertubulären Strukturen sind durch partielle Demineralisation vor Legen der Füllung bedingt.

M = Mineralisationen von feinkristallinen Materialien

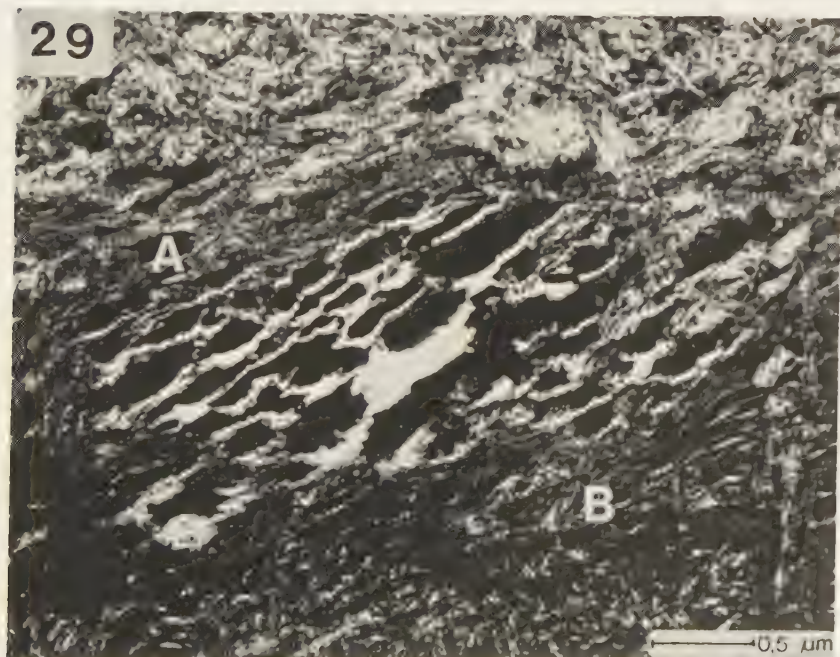
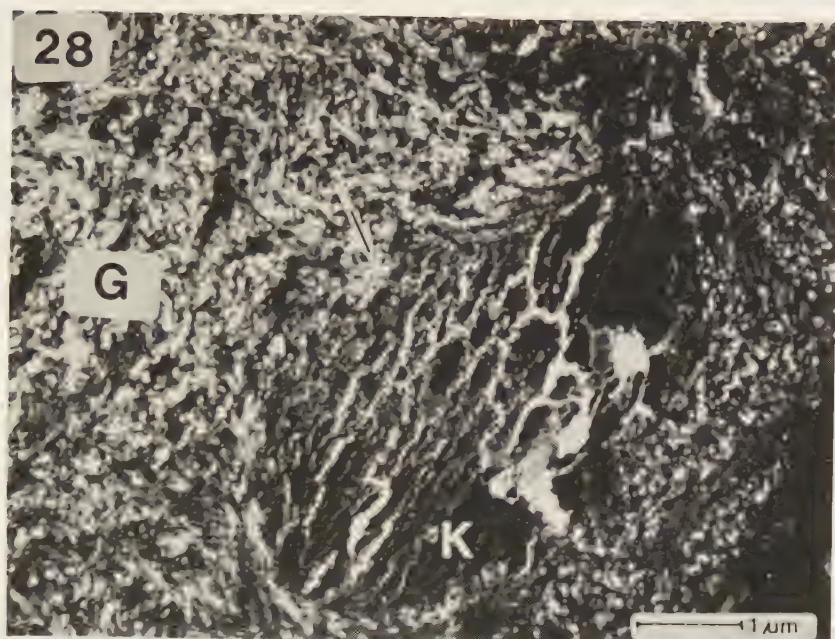
Abb. 27: TEM-Bild (OV 10.000-fach, 80 kV) der Stelle "4" der Abb. 4 aus 4.3.1. eines obliterierten Dentinkanals im partiell demineralisierten Dentin. Das Kanallumen ist durch feinkristallines Material des peritubulären Dentins fast ausgefüllt (F). Der zentrale Teil (Z) ist durch Einzelkristallite erfüllt. In der Grundsubstanz (G) ist eine teilweise Demineralisation zu erkennen mit Lücken zwischen den Kristalliten.

Abb. 28: TEM-Bild (OV 10.000-fach, 80 kV) der Stelle "3" der Abb.4 aus 4.3.1. zeigt einen obliterierten Dentinkanal (K) im partiell demineralisierten Dentin. Die Demineralisation der Grundsubstanz (G) hat das peritubuläre Dentin erreicht und die Grenzen zwischen den beiden Anteilen verwischt (—→). Daraus läßt sich schließen, daß als Folge des fortschreitenden kariösen Prozesses das peritubuläre Dentin gebildet wurde und nachfolgend durch Demineralisationsprozesse angegriffen wurde.

Abb. 29: TEM-Bild (OV 20.000-fach, 80 kV) der Stelle "5" der Abb.4 aus 4.3.1. zeigt die Grenze der Demineralisationsfront. In der Grundsubstanz sind die Strukturen des Kollagens und Umkristallisationen durch Demineralisationsvorgänge (A) neben einem als normal imponierenden Dentinbereich zu erkennen.

Schollige Strukturen im obliterierten Dentinkanal sind schnittbedingt.

B = normaler Dentinbereich



4. 3. 6. Zusammenfassung für das Präparat 72 mit Unterfüllung

Übersicht zu den Ergebnissen des Präparates 72: Entlang des kavitätenbodennahen Dentins findet sich ein stark variierender Gehalt von Zn und Sn. An der unmittelbaren Kavitätenbodengrenze kommen teils nur Sn-Anzeigen ohne Zn vor (Abb.17), teils jedoch im gleichen Bereich (wie in Abb.22,23) Sn und Zn, oder auch lokal eher bevorzugt Sn oder Zn (wobei in Abb.19 und 20 ein gewisser lokaler Antagonismus erkennbar ist). Diese Sn- bzw. ausgedehnteren Zn-Bänder reichen zwischen 30 bis 150 μ m in stärkeren Konzentrationen pulpenwärts. Diese Grenze entspricht in etwa den makroskopisch erkennbaren Verfärbungsbezirken.

Lokal kommen vereinzelt vereinzelt Ca-ärmere Herde vor (wie in Abb. 15), die bevorzugt mit Metallen besetzt sind.

Entlang einer Demarkationslinie zwischen weichem und härterem Dentin entsteht am Schliffpräparat eine Stufe. Kavitätenbodenwärts davon (d.h. im weicheren Bereich) zeigt sich eine deutliche Zn-Erhöhung (wie in Abb.25). Eine vermehrte Zuordnung der Metalle zu tubulären Strukturen im Vergleich zur Grundsubstanz ist auch bei Punktanalysen in peritubulären-, intratubulären- wie intertubulären angrenzenden Bereichen (z.B. in Abb.12) oder Flächenverteilungsanalysen (Abb.19,20,21,23) nicht möglich. Der Calciumgehalt in unmittelbarer Kanalumgebung schwankt stärker als dies für die intertubuläre Substanz zutrifft. Die makroskopisch mit bloßem Auge bei Auflichtbetrachtung am Bruchpräparat erkennbare Verfärbungsgrenze

liegt knapp über der oben beschriebenen Demarkationslinie der starken Metallimprägation.

Strukturell bietet sich ein in seiner Vielfältigkeit beeindruckendes Bild. Auf engstem Raum sind sowohl regressive Veränderungen in großer Schwankungsbreite wie auch annähernd der Norm zuzuordnende Gebilde neben demineralisierten Strukturen anzutreffen. Solche Veränderungen treten in der intertubulären Grundsubstanz und der peritubulären Substanz auf. Beide betreffen sowohl quantitativ die Ausdehnung der Zone wie auch qualitativ das Strukturgefüge und nicht zuletzt auch die Veränderungen der intratubulären Verhältnisse. Auch hier bietet sich eine große Varianz mit praktisch obliterierten Tubuli, Ausgüssen mit kristallinen Massen (wie z.B. in Abb.9), die im REM-Bild plastisch in Erscheinung treten, Fehlen von Querkanal-mündungen, sphärischen, warzenförmigen Innenwandauswüchsen (wie z.B. in Abb.11) u.a. in den Kanalsystemen. Solche Veränderungen weichen also von der Einengung der Wand bis zur vollständigen Obliteration.

Regressiv und durch Demineralisation bedingte Veränderungen kommen auch in der Feinstruktur des Kristallitgefüges deutlich zum Ausdruck, wie z.B. in morphologisch unterschiedlichen Kristallitauflagerungen an den Kanalinnenwänden, wechselnder Kristallitgestalt und Dichte der Lagerung im peritubulären Gefüge und intertubulären Grundsubstanz.

Durch die TEM-Befunde lassen sich die REM-Befunde ultrastrukturell wesentlich erweitern und ergänzen.

4. 4. Dentinpräparat ohne Unterfüllung (Präp.54)

4. 4. 1. Übersicht

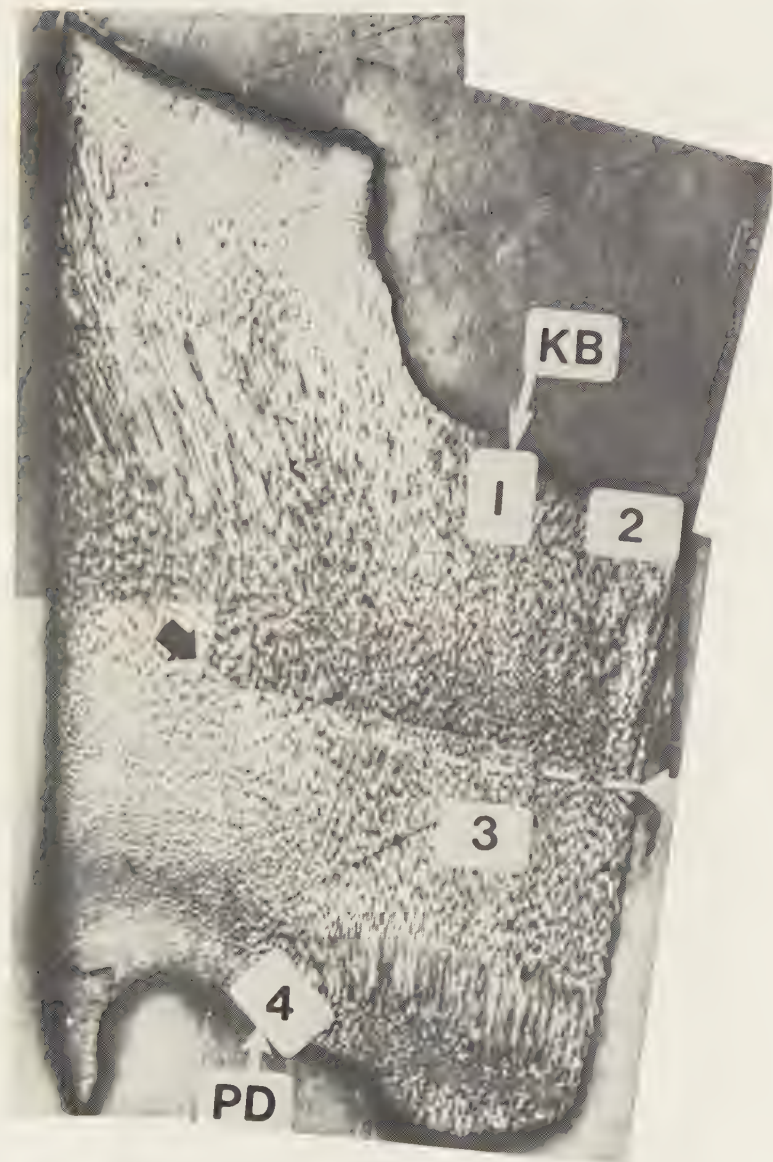
Abb.30 : Dentinschliff des Präp.54 (OV 50-fach). Das Schliffbild des in Kunststoff eingebetteten Dentinpräparates ist aus 5 Auflicht-Mikrophotographien zur übersichtlichen Orientierung vom Kavitätenboden (KB) bis zum Pulpendach (PD) zusammengesetzt.

Die mit bloßem Auge deutlich erfaßbare, ausgeprägt tiefgraue bis graubraune Verfärbung findet sich unterhalb des KB und reich bis 1 mm (= 1000 µm) gegen das PD. Dieser verfärbte Bezirk ist teils zackig scharf begrenzt, größtenteils jedoch schwindet die Verfärbung auslaufend. Das pulpendachnahe Areal erscheint nicht mehr verfärbt. Die makroskopisch erkennbare Verfärbungsgrenze ist markiert.(-----)

Die Areale 1,2,3 und 4, die im anschließenden Bildteil dokumentiert werden, sind am Schliffbild eingetragen.

KB = Kavitätenboden

PD = Pulpendach





4. 4. 2. Detailaspekte des Bruchgefüges im Rasterelektronenmikroskop

4. 4. 2. 1. Untersuchungen am Kavitätenboden

Abb. 31: REM-Bild (0V 3.000-fach, 25 kV) des Kavitätenbodens nach Entfernung der Sn-Ag-Amalgamfüllung. (Die Stelle ist am Schliffbild, Abb.30, mit KB gekennzeichnet). Der Boden zeigt eine Deckschicht, die einerseits globulär organisch anmutende ($\varnothing$ kleiner 1 μm) Formationen aufweist, andererseits aber aus kristallinen, plattenförmigen Gebilden (x) besteht. Vereinzelt durchbrechen kanalartige Mündungen ($\varnothing$ ca.0,5 bis 1,2 μm) diese Deckschicht ($\longrightarrow$) am KB. Es zeigen sich keine direkt offenen Dentintubuli durch diese Deckschicht. Durch Rotation und Kippung der Probe ergibt sich der Eindruck, daß die beschriebenen kleinen Mündungen auch tatsächlich durch die Auflageungsschichte als Kanäle gegen das Kavitätenbodendentin führen.

4. 4. 2. 2. dgl. kavitätenbodennahe

Abb. 32: REM-Bild (0V 1.000-fach, 25 kV) einer kavitätenbodennahen Dentinbruchfläche der Stelle "2" aus Abb.30. In Weite, Kompaktheit und Ausdehnung der peritubulären Hofschichte variierende Tubuli treten im Bezirk (x) ohne ausgeprägte peritubuläre Hofbezirke im Gegensatz zu engbenachbarten Kanälen (K) auf, mit klarer Begrenzung der Hofbezirke. Feine "Auswüchse", die feste Bestandteile der Kanalwand zu sein scheinen, finden sich an den Tubuliwänden der Kanäle (X) und sind durch Pfeile gekennzeichnet.

Abb. 33: REM-Bild (0V 1.000-fach, 25 kV) einer Schicht unmittelbar unter dem Kavitätenboden bis ca. 120 μ m Dentintiefe von Stelle "1" auf Abb.30 aus 4.4.1. Kanäle führen bis an die Kavitätenbodengrenze heran. Losgelöste, aufgelagerte Dentinbruchstücke unterscheiden sich deutlich (x) von sphärischen Vorsprüngen in den Lumina selbst, die fest mit der Wand verbunden zu sein scheinen. Insgesamt ist die intertubuläre Substanz aufgelockert. Der eingezeichnete Ausschnitt ist in der folgenden Abb. weiter vergrößert.

Abb. 34: REM-Bild (0V 3.000-fach, 25 kV) des Ausschnittes aus Abb.33. In den Dentinkanälen befinden sich wandständige kugelige, warzenförmige Gebilde. Durch die stärkere Vergrößerung zeigt sich deutlich, daß diese beschriebenen Gebilde (—→) direkt aus dem strukturellen Gefüge des peritubulären Hofbezirkes ins Lumen hervortreten. Diese Gebilde haben kristallinen Charakter. Abgehende Nebenkanäle sind in diesem veränderten Kanallumen nicht zu erkennen.

33



34



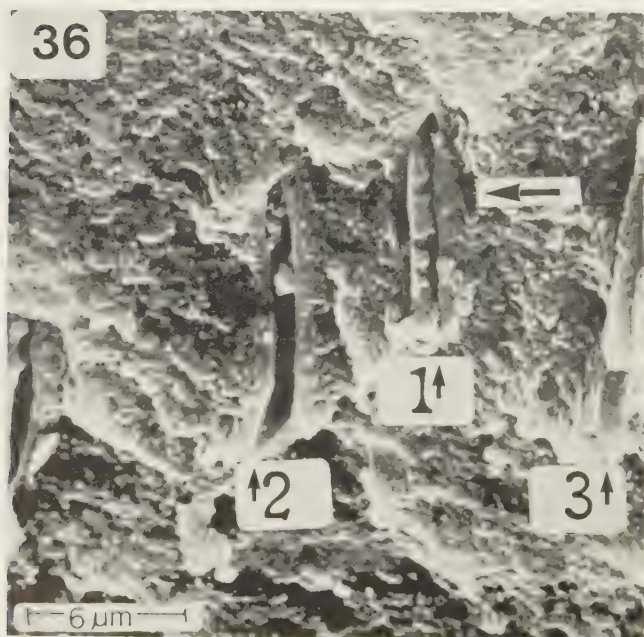
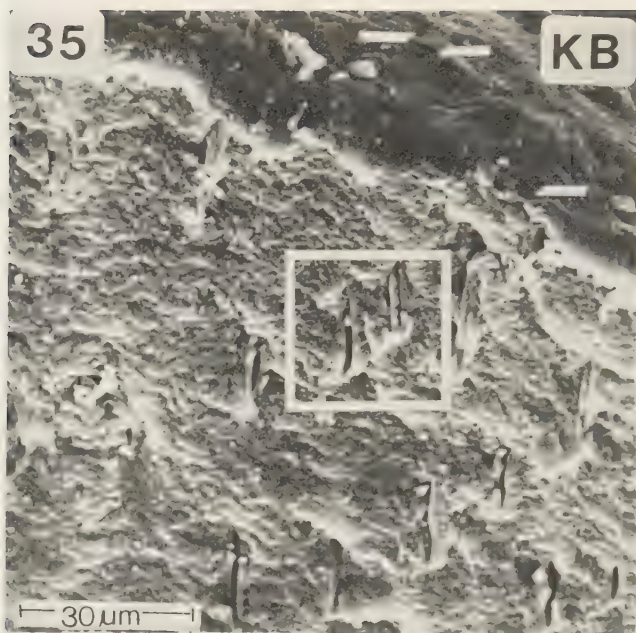


Abb. 35: REM-Bild (0V 1.000-fach, 25 kV) der Stelle "1" aus Abb.30.

Es ist der Dentinbezirk unmittelbar unter dem Kavitätenboden mit Bruchkante und Kavitätenboden selbst dargestellt. Vereinzelt scheinen Tubuli (x) direkt an den KB heranzuführen. Unterschiedliche Brüchigkeit und Breite der peritubulären Hofbezirke sind auffällig. Am KB treten vereinzelt Öffnungen ($\longrightarrow$) auf (Vergleiche Abb.31).

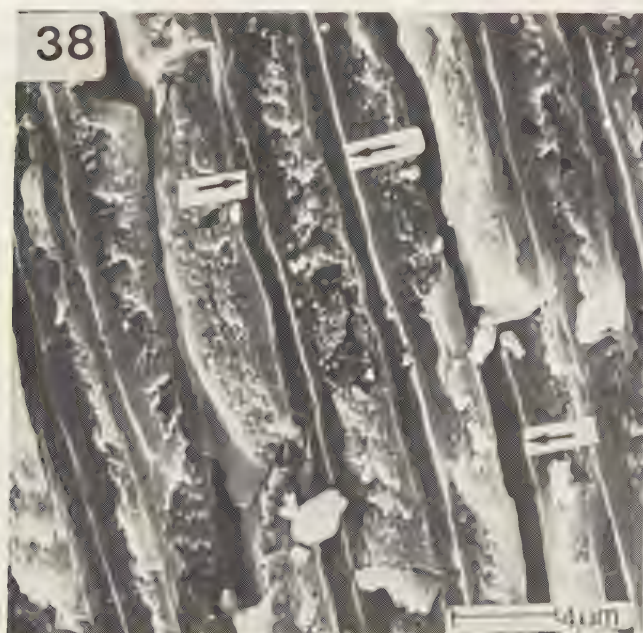
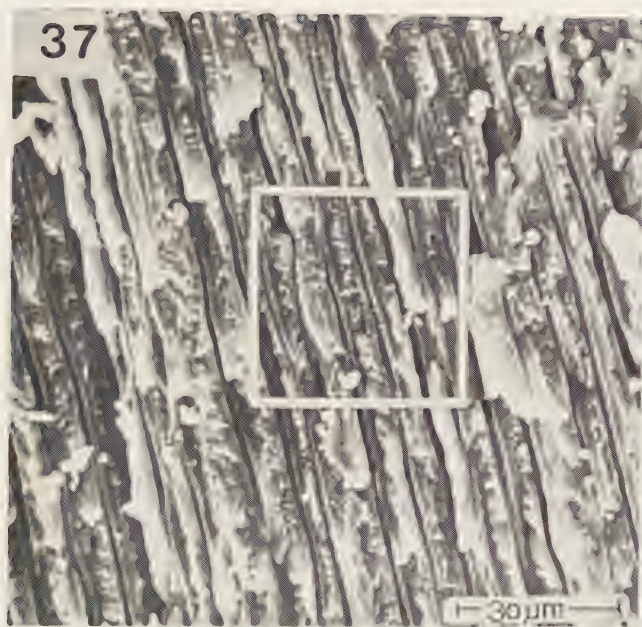
Der eingezeichnete Bezirk ist in der folgenden Abb. weiter vergrößert.

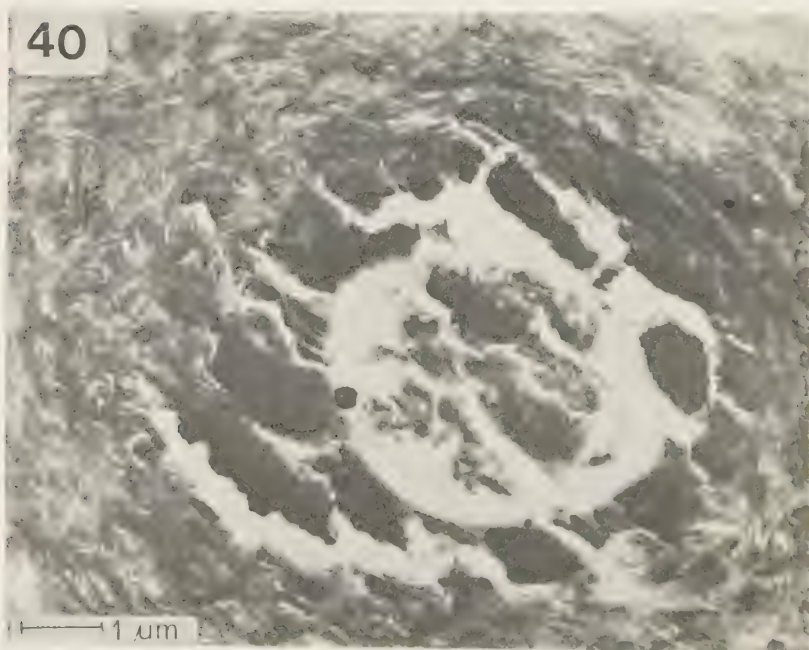
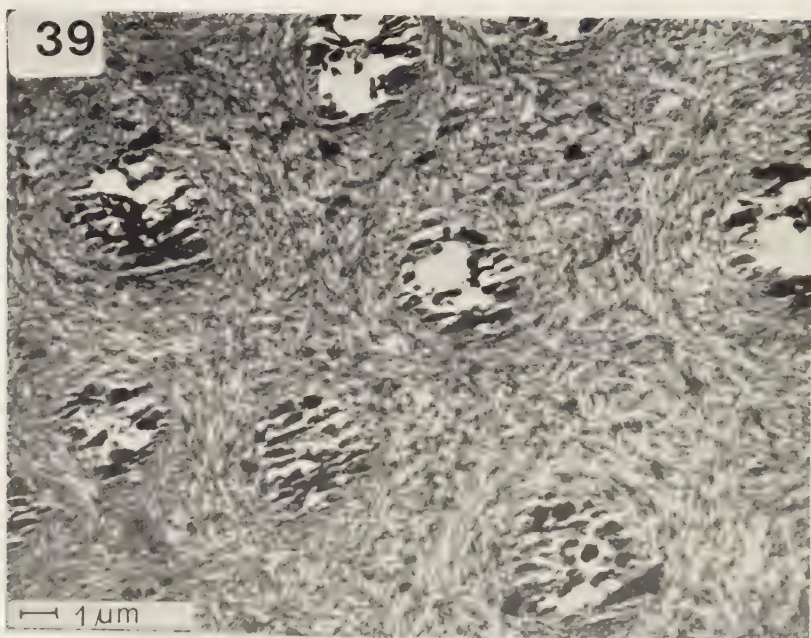
Abb.36 : REM-Ausschnitt aus Abb.35 (0V 3.000-fach, 25 kV).Zwei Kanäle unmittelbar unter dem KB (ca.25 μ m von der Bruchkante entfernt) zeigen die oft beobachtete ausgeprägte morphologische Varianzbreite benachbarter Strukturgebilde. Eine tubuläre Begrenzung ($\longrightarrow$) des Kanal 1 zeigt kaum mehr eine strukturell kompakte peritubuläre Zone, die sich vom intertubulären Gefüge abhebt.Die gegenüberliegende Wand ist strukturell stark aufgelockert und bröckelig aufgebrochen. Die Lumenweite schwankt anscheinend. Kanal 2 hingegen ist von einer kompakteren peritubulären Zone umfaßt. Die Wandbegrenzung scheint relativ glatt. Kanal 3, weniger als 10 μ m vom Kanal 1 entfernt,weist ein weitreichend obliteriertes Lumen auf. Das peritubuläre und angrenzend intertubuläre Gefüge ist rauh.

4. 4. 2. 3. Untersuchungen tief im Dentin außerhalb der makroskopisch sichtbaren Verfärbung

Abb. 37: REM-Bild (OV 1.000-fach, 25 kV) aus dem Bezirk 3 der Abb.30 aus 4.4.1. Diese Dentinstelle liegt pulpenwärts außerhalb der verfärbten Zone. Die Kanäle sind über längere Distanz mit glatten Begrenzungsflächen durch den Bruch längsgetroffen und offen gelegt. Die Distanz zwischen den einzelnen Kanälen erscheint bruchbedingt gering, die peritubulären Strukturen sind regelmäßiger, die Bruchfläche glatter als in Vergleichszonen gegen den KB zu (wie in Abb.33, 34,35,36). Eine glatte peritubuläre Matrix und davon klar abgesetzte rauhe intertubuläre Substanz treten deutlich hervor. Der eingezeichnete Ausschnitt ist in der folgenden Abb. stärker vergrößert.

Abb.38 : REM-Bild (OV 3.000-fach, 25 kV) des Ausschnitts aus Abb.37. Die Kanalwände weisen zahlreiche Mündungen (—→) auf, die in die peritubulären Dentinanteile zu führen scheinen. Die peritubulären glatten Hofbezirke sind auffallend kompakt mit weitgehend glatten Begrenzungen, einerseits zum Tubuluslumen hin, anderseits aber auch strukturell abgegrenzt von der intertubulären Matrix. Dieser Bruchverlauf mit längsgetroffenen und offen gelegten Dentinkanälen entspricht in etwa dem Bild eines "Normaldentins" wie es bei Kontrollzähnen auftrat.





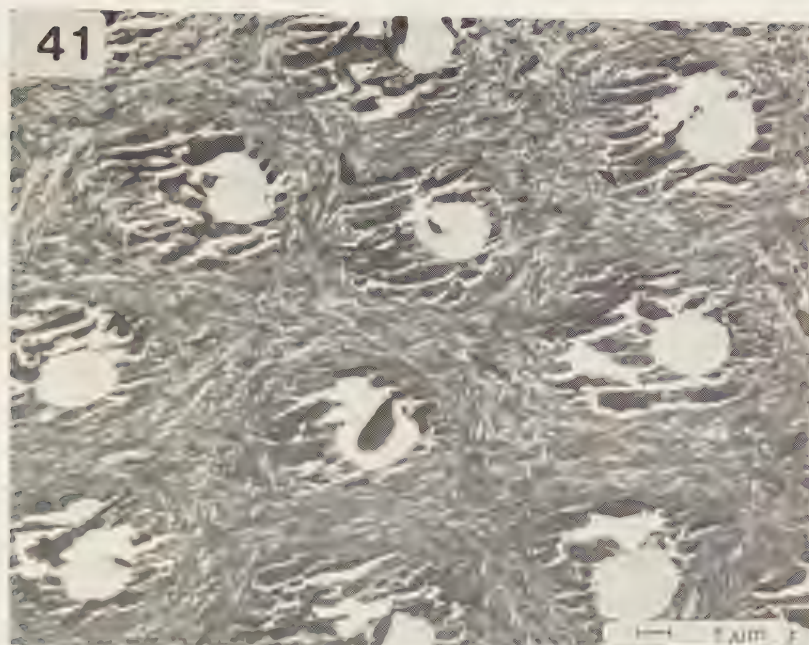
4. 4. 3. Transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen

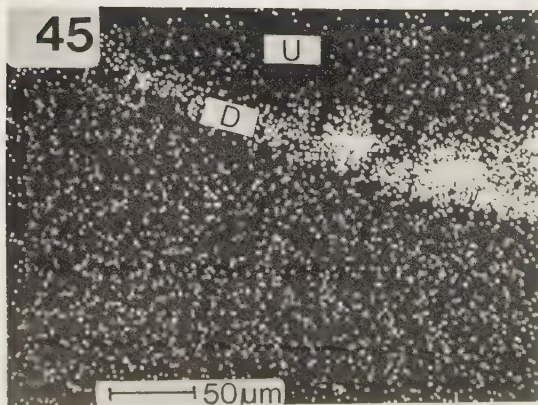
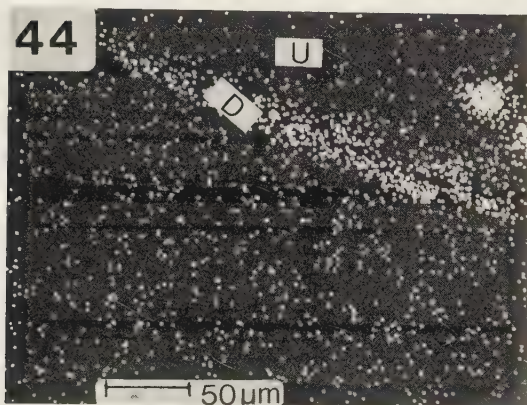
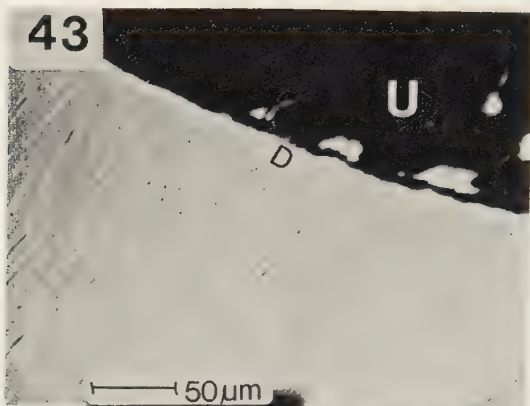
Abb. 39: TEM-Bild (OV 3.000-fach, 80 kV) der Stelle "2" der Abb.30 aus 4.4.1. KB-nahes Dentin zeigt regressive Veränderungen in den Kanälen sowohl peritubulär wie intratubulär. Unterschiedliche Einengung der Kanäle, die bis zur vollständigen Obliteration reicht, prägt diesen Abschnitt. (Die schollige Struktur im Kanalbereich ist schnittbedingt). Intertubulär ist eine gewisse Auflockerung im Sinne einer partiellen Demineralisation zu erkennen. Einzelne Kristallite erscheinen vergrößert.

Abb. 40: TEM-Bild (OV 14.000-fach, 80 kV) der gleichen Stelle wie Abb.39. In einem deutlich eingeengtem Lumen sind neben der schollig erscheinenden Massen feine kristalline Ausfüllungen zu erkennen, welche die Natur dieser scholligen Gebilde als kristalline Aggregate deuten lassen.

Abb.41: TEM-Bild (0V 3.000-fach, 80 kV) der Stelle "3" der Abb.30 aus 4.4.1. zeigt pulpenwärts von der Verfärbungsgrenze im Vergleich zur vorhin dargestellten Abb. 39 geringere Einengung der Dentintubuli (d.h. als Ausdruck geringer regressiver Veränderungen). Die intertubuläre Substanz weist keine Demineralisationserscheinungen auf. Die Beziehung der Kristallite zur organischen Kollagenmatrix erscheint ungestört.

Abb.42: TEM-Bild (0V 14.000-fach, 80 kV) desselben Areals wie vorhergehende Abb.41. Der Zusammenhang von Matrix und Kristallitanteil ist sehr innig. Dieser Aspekt entspricht einem "Normalzustand". Die Zuordnung der Kristallite zur Querstreifung des Kollagens ist durch gute optische Auflösung zum Teil erkennbar (————>).





4. 4. 4. Wellenlängendispersive Einzelanalysen (Flächenverteilungsbilder, z.T. mit Elementkompositionsvergleich)

4. 4. 4. 1. Übersicht für leichte bzw. für schwere Elemente am KB

Abb. 43: Kompositionsbild (0V 300-fach, 25 kV, 1.15×10^{-8} Amp.) der Stelle "1" des Schliffbilds aus Abb.30. Wie am gesamten KB entlang dieser Bruchfläche ist eine Zone mit hoher Metallkonzentration (Tiefe ca. 50 μm) zu erkennen, die lokal variierend nach ca. 20 μm stark abnimmt und ab einer Distanz von 600 μm vom KB entfernt keine Metallkonzentrationen mehr feststellen läßt.

D = Dentin, U = Untergrund

4. 4. 4. 2. Elementeinzelanalysen

Abb. 44: Elementflächenverteilungsbild für Sn ($L\alpha_1$, 0V 300-fach, 25 kV, 1.12×10^{-8} Amp.) derselben Stelle wie in Abb.43. Sn-Konzentrationsband von ca. 30 μm Breite entlang des Kavitätenbodens weist einzelne Konzentrationsherde auf.

D = Dentin, U = Untergrund

Abb. 45: Elementverteilungsbild für Zn ($K\alpha_1$, 0V 300-fach, 25 kV, 1.12×10^{-8} Amp.) derselben Stelle wie in Abb.43 und 44. Das Zn-Band entlang des kavitätenbodennahen Dentins ist breiter (ca. 50 μm) als das Sn-Band. Es weist vermehrte Konzentrationsherde in unmittelbarer KB-Nähe auf. Die Metallverteilung ist diffus, eine lokale Zuordnung von Metall zu Struktureinheiten ist nicht ersichtlich.

U = Untergrund, D = Dentin

4. 4. 4. 3. Element-Kompositionsverteilung und Elementeinzelanalysen in Pulpendachnähe

Abb. 46: Kompositionsbild (0V 300-fach, 25 kV, 1.12×10^{-8} Amp.) aus unmittelbar pulpenahem Dentin, auf Abb.30 mit PD gekennzeichnet. Entlang der im pulpenahen Bereich weiten Dentinkanälchen sind die hellen Bänder schwach ausgebildet.

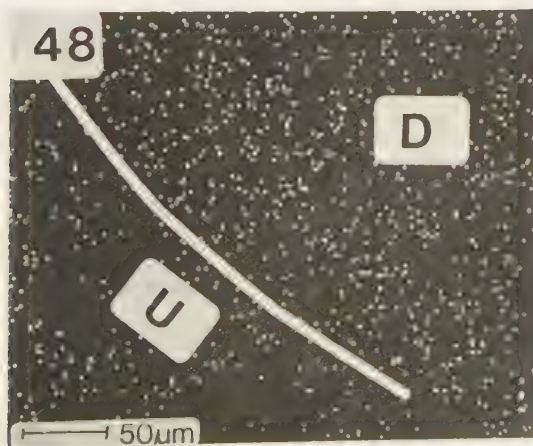
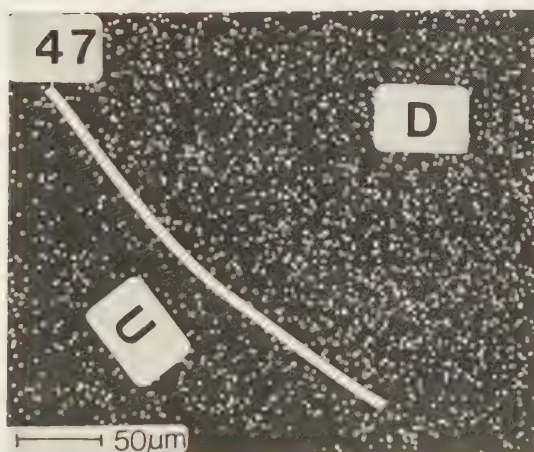
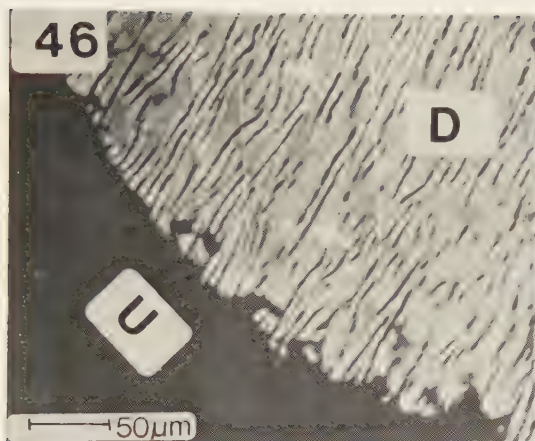
D = Dentin, U = Untergrund

Die unterschiedlichen Erscheinungen an den Kanälen ($\longrightarrow$) sind durch die Weite des Kanals, durch die geringfügige Ausbildung von peritubulären Hofbezirken und dadurch geringer auftretenden Topographieeffekten bedingt.

Abb. 47: Elementflächenverteilungsbild für Zn ($K\alpha$, 0V 300-fach, 25 kV; 1.12×10^{-8} Amp.) desselben Areals wie in Abb.46. In diesem Dentingebiet sind gegenüber der normalen Untergrundanzeige (U) außerhalb des Dentins im Dentin kaum vermehrte Anzeigen, die nicht durch Topographieefflüsse zu erklären sind.

Abb. 48: Elementflächenverteilungsbild für Sn ($L\alpha_1$, 0V 300-fach, 25 kV, 1.12×10^{-8} Amp.) derselben Lokalisation wie in Abb.46 und 47. Der Dentinbezirk (D) ist durch gestrichelte Linie vom leeren Gebiet (U) abgegrenzt. Es treten keine erhöhten Zinnanzeigen in der Pulpen-Dentingrenze auf.

Die Anzeigen für Ag und Hg fallen ebenfalls negativ aus.



4. 4. 5. Zusammenfassung für das Präparat 54 ohne Unterfüllung

Eine schmale 10 bis 25 μm breite Sn-Zone (wie in Abb.44), die teils die wenigen Ca-ärmeren Randzonen bis auf 180 μm erfüllt, zieht sich am KB-nahen Dentin entlang. Zn tritt gegen den KB-Rand vermehrt bis zu 250 μm Tiefe konzentriert auf. Von diesen Zonen pulpenwärts treten keine höheren Metallanzeigen in Erscheinung. Ag und Hg sind stets negativ. An der PD-Grenze (wie in Abb.47) ist eine eventuell mögliche minimale Zn-Anzeige zu registrieren.

Der KB zeigt aufgelagerte kristalline Strukturen an Stellen an denen auch keine Unterfüllung vorhanden ist (z.B. in Abb.31). Einzelne nur mäßig veränderte Kanäle führen an den KB (wie z.B. in Abb.35) heran. Lokal jedoch treten an KB-nahen Zonen auch Kanäle und Zwischensubstanz mit deutlichen Demineralisationserscheinungen auf. Pulpenwärts gelegene Dentinbezirke haben eher reguläre Dentinstrukturen (wie in Abb.37), aber es finden sich ebenfalls in solchen Bereichen geringgradige Zeichen von Umbauerscheinungen. Dies wird auch durch Kristallitgefüge und Kristallitgestalt bestätigt. Die makroskopisch am Dentinbruch deutlich hervortretende Verfärbung reicht weiter pulpenwärts als die Anzeige der hohen Metallkonzentrationen.

4. 5. Aspekte der Rasterelektronenmikroskopie, energie- und wellenlängendispersiven Analysen der gesamten Präparatserie (Übersicht)

4. 5. 1. Präparat 25: Entlang des KB-Dentins zeigen sich vereinzelt Sn-Anzeigen bis zu einer Tiefe von 80 μm . Hingegen treten Zn-Anzeigen in variierender Intensität durchgehend bis zu einer Tiefe von 700 μm auf. Der Konzentrationsabfall von Zn ist abrupt. Die Grenzlinie verläuft sägezahnartig. An dieser Begrenzung tritt am Schliff topographisch leichte Stufenbildung auf (bedingt durch Schliff und Politur, die stärkere Abtragung von weicherer Dentinsubstanz mit sich bringen). Andernorts kommt jedoch auch diffuses Auslaufen der Zn-Anzeige vor.

Es ist keine spezielle Metallzuordnung zu den Tubuli möglich. Die Anzeigen für Ag und Hg sind negativ.

Ausgeprägte Dentinstrukturveränderungen finden sich in wechselndem Ausmaß im peritubulären Gefüge, in der mineralisierten Grundsubstanz sowie in atubulären Dentinbezirken in KB-Nähe. Vereinzelt treten kristalline Massen in Dentinkanälen auf. Erhöhte Ca-Anzeigen finden sich an Linienprofilen, die im tubulären Bereich Konzentrationschwankungen aufweisen. Regressive Veränderungen finden sich auch in der Gegend der Verfärbungsgrenze. Die makroskopisch erkennbare Verfärbung ist pulpenwärts ausgedehnter als das Areal der Metallvorkommen und der strukturell ausgeprägten Dentinveränderungen, die auf Demineralisationsvorgänge hinweisen.

4. 5. 2. Präparat 30: Für am KB angrenzendes Dentin erhält man Sn- und Zn-Anzeigen wechselnder Intensität und Breite. Sn ist an manchen Zn-reichen Stellen vom Untergrundwert nicht deutlich abgehoben. Es zeigen sich keine lokalen Herde mit ausgeprägt niederem Ca-Gehalt. Zn ist bis zu einer Tiefe von 200 bis 250 μm merklich erhöht und annähernd homogen verteilt, ohne Konzentrationserhöhungen in tubulären Bereichen. Sn ist lokal bis zu 90 μm Tiefe klar erfaßbar. Pulpenwärts in Bezug auf Sn- und Zn-Anzeigen traten keine weiteren Metallanreicherungen auf. Die Ag- und Hg-Analysen sind negativ.

Lokal differenzierte strukturelle Veränderungen sind sowohl im tubulären und peritubulären Bereich, aber auch in der Grundsubstanz erkennbar. Irreguläre Bruchgefüge treten KB-nahe auf. Pulpennahe Bezirke sind durch homogenere Bruchflächengestalt (längsgetroffene Kanäle) charakterisiert. In den Tubulilumina sind Quermündungen erkennbar.

Die Ausdehnung der mit bloßem Auge erfaßbaren Verfärbung ist pulpenwärts ausgedehnter als die Metallanzeigen, wobei das Band stärkster Farbintensität entlang des KB läuft, analog der hohen Metallanzeigen.

4. 5. 3. Präparat 49: Dem KB folgend findet sich eine 40 bis 120 μm breite Zone mit intensivem Sn-Vorkommen. Ag-, Hg- und Zn-Bestimmungen verlaufen negativ. Pulpenwärts treten keine erhöhten Metallkonzentrationen auf. Dem KB sind organisches Material und kristalline Platten aufgelagert, wobei der KB von zahlreichen Öffnungen, die zu den Dentinkanälen führen, durchbrochen wird.

Die Grundsubstanz in KB-nahen Abschnitten erscheint im Sinne einer Demineralisation geringfügig aufgelockert. Die mit bloßem Auge erkennbare Verfärbung am Bruchpräparat überschreitet optisch die Zone des erhöhten Sn-Vorkommens.

4. 5. 4. Präparat 58

Eine schmale, bis 600 μm tiefe, intensiv Zn-haltige Dentinzone umrandet den KB. Nur an zwei eng begrenzten Stellen erfolgt eine Sn-Anzeige bis 90 μm unter den KB. Einzelne Ca-Herde, die bis 70 μm unter den KB reichen, weisen lokal verstärkten Metallgehalt auf. Weiter pulpenwärts sind keine Metalle feststellbar. Ag- oder Hg-Anzeigen verlaufen stets negativ. Vereinzelt Dentinkanäle sind bis zum KB zu verfolgen. Das Dentingefüge zeigt in unmittelbarer KB-Nähe die stärksten Veränderungen: aufgelockertes, bröckeliges, intertubuläres Gefüge, obliterierte Kanäle, ausgeprägt variierende Lumen-dimensionen im Sinne von Einengung, im Lumen kristallin-warzige Gebilde und keine Querkanalöffnungen. Gegen die Pulpa zu findet sich regelmäßiger Bruchflächengestalt mit längsgetroffenen Kanälen und gleichmäßiger erscheinenden Tubuli. Die Lumina dieser Kanäle lassen zum Teil Mündungen in ihren Wänden erkennen.

4. 5. 5. Präparat 83

An der KB-nahen Dentinzone kommen sowohl Sn- und Zn-Anzeigen an gleichen Stellen wie auch in Tiefen bis zu 400 μm alleine Sn und andernorts bis 800 μm Tiefe homogen verteilte Zn-Anzeigen vor.

An zackenförmig begrenzten Verfärbungsstellen findet sich an der Oberfläche des Schliffes eine Stufenbildung. Die Zone mit Zn-Anzeige in diesem weicheren KB-wärts gelegenen Abschnitt endet an dieser Stelle. Pulpenwärts davon kommen keine vergleichbaren Metallkonzentrationen vor. Es finden sich keine Ag- oder Hg-Anzeigen. Regressive sowie durch mögliche Demineralisation hervorgerufene Tubulusveränderungen fallen im KB-nahen Bereich auf (Sklerosierung, stark schwankende peritubuläre Hofbreiten und -Gefüge, intratubuläre kristalline Depositionen). Das Gefüge wird pulpenwärts regulär, während im unmittelbaren Pulpenbereich eine irreguläre tubuläre Anordnung überwiegt (Sekundärdentinbildung).

5. Diskussion und klinische Aspekte

In der Literatur wurden zum Problemkreis von Dentinverfärbung unter Amalgamfüllungen und Metallimprägnation topographisch-morphologische Metallzuordnungen mittels Röntgenmikrosondenanalysen in klinisch sondenhartem Dentin unter Einbeziehung ultrastruktureller Aspekte, wie sie sich im REM-Bild an Bruchflächen oder an Schnitten im TEM darstellen lassen, noch nicht behandelt.

Aus den bisher zum Teil widersprechenden Mikrosondenergebnissen bei Metallimprägnation des Dentins wird deutlich, daß ein Informationsgewinn beim Einsatz komplizierter elektronischer Geräte nicht durch eine bloße Aneinanderreihung der Resultate erzielt werden kann, sondern durch kombinierte Untersuchungsgänge an identischen Präparatstellen und deren kritische Interpretation.

So wurden angebliche Quecksilber- und Silber-Anreicherungen durch Mikrosondenanalysen (KATO (1969)) am Kavitätenbodendentin später als Artefakte erkannt (KUROSAKI und FUSAYAMA (1973)). Deshalb wurde im Kapitel "Material und Methodik" dieser Arbeit in Einzelheiten auf Untersuchungsgeräte und Methodik sowie auf Dentin-Topographieeffekte eingegangen, die bei solchen Untersuchungen auftreten. Aus den gewonnen Erkenntnissen erfolgen keine absoluten sondern nur semi-quantitative, relative Konzentrationsangaben über Metallgehalte, da der Ordnungszahleffekt beim Vergleich von Spuren und Konzentrationen in verschiedenen Matrixelementen stört und keine genügend sichere Korrektur der unterschiedlichen Röntgenabsorption im Dentin möglich

erscheint. Eine Korrektur wird durch die unregelmäßige Oberfläche, die durch die Dentintubuli bedingt ist, noch problematischer.

Ätiologischen Aspekten zur Dentinimprägnation liegen auch Kavitäten und Amalgamfüllungen zugrunde, die prozentuell nach MÖCKE (1971) ca. 33% Silber, 47% Quecksilber und 20% Zinn als Hauptbestandteile enthalten.

Auf Grund des kristallinen Gefüges der Silber-Zinn-Amalgame ist Korrosion zu erwarten (WAGNER (1962), MATEER und REITZ (1970), RYGE et al. (1953), FUSAYAMA und HAYASHI (1970), SUFTIN und OGILCIE (1972)), die oberflächlich zu Verfärbungen (SWARTZ (1958)) führt. Anfällig ist vor allem die β -2-Phase des Zinn-Quecksilber-Mischkristalls (KROPP (1974)), aus deren Korrosionsprodukten die Zinn-Anreicherungen im Dentin stammen können, das Quecksilber hingegen soll überwiegend durch Folgereaktionen mit dem Amalgam gebunden werden.

Eine Diffusion aller wesentlichen Amalgamkomponenten ins Dentin kann als gesichert angesehen werden (THOMMEN (1972) u.a.), die sowohl aus dem Amalgam der Aushärtungsphase wie auch aus Korrosionsprodukten herzurühren scheinen. Diskrepanzen und Bedenken über die Abgabe von Metallen aus Amalgamen und deren Korrosionsprodukten beziehen sich in erster Linie auf das Quecksilber (FRYKHOM und ODEBLAD (1955), NAUJOKS et al. (1963), BABENDERERDE et al. (1970)) wegen der möglichen allergisierenden Wirkungen von Quecksilberverbindungen und der allgemein medizinischen Bedeutung von Quecksilber-Schädigungen. Die Metaldiffusion aus der Füllung durch das Dentin in pulpennahe

Bezirke ist mengenmäßig im Vergleich mit der Metallabgabe aus Amalgamfüllungen in das Mundmilieu äußerst gering. Durch mögliche strukturelle Dentinbarrieren für den Metalltransport ist eine Diffusion zur Pulpa abermals weiter zu differenzieren.

Bei der durchgeführten Sondenuntersuchung haben sich Quecksilberkonzentrationen im Dentin nicht erfassen lassen; dies gilt in gleicher Weise auch für Silber, woraus jedoch nur geschlossen werden kann, daß diese beiden Elemente unter der Auflösungsgrenze (0,1% bei optimalen Bedingungen) lagen und nicht mehr vom Untergrund klar zu trennende Anzeigen ergaben.

Das Ausmaß der Dentinimprägnation scheint nicht wenig von den Randspaltenverhältnissen sowie der Beschaffenheit des Kavitätenbodens und der darunterliegenden Dentinstrukturen sowie anderen die Diffusion begünstigenden Faktoren wie galvanischen Einflüssen (MASSLER und BARBER (1953), SCHRIEVER und DAIMOND (1951), PHILLIPS (1957)) abzuhängen.

Je nach Füllung ist mit mehr oder weniger Randspalten zu rechnen und infolgedessen mit unterschiedlicher Diffusion und Korrosion. Ein völlig dauerhafter dichter Verschuß ist nicht zu erwarten (NELSON et al. (1952), SPRETER VON KREUDENSTEIN (1958), GOING und MASSLER (1961)). Die Deckung des Kavitätenbodens mit Schleifrückständen (ADOLPH (1958)), kristallinen Formationen oder mit teilweise oder überwiegend deckenden Unterfüllungen zeigen mikroskopisch kleine Öffnungen, wie sie in Abb. 31 und 35 in Erscheinung treten. Bei

manchen Unterfüllungen ist sicherlich eine gewisse Barriere gegen das Eindringen von Metallen aus Amalgamen gegeben (FAIN (1961)), doch können zinkhaltige Unterfüllungen ihrerseits auch als Metallspender in Frage kommen, wie von MOCKE (1966 und 1971) postuliert wurde und auch aus vorliegenden Mikrosondenbefunden hervorgeht. Manche Zinkanreicherung im strukturell veränderten Dentin bei Fehlen von Zinnanzeigen wird auf solche Ursachen zurückgeführt.

Erhöhte Metallgehalte von Zinn in mindermineralisiertem Dentin steht in grundsätzlichem Einklang mit Ergebnissen von KUROSAKI und FUSAJAMA (1973), van der LINDEN und van AKEN (1973), sowie HALS und HALSE (1975), während KUROSAKI und FUSAJAMA (1973) in Präparaten ohne zinkhaltige Unterfüllungen in Übereinstimmung damit auch keine Anreicherungen von Zink feststellten.

Auf Grund der ultrastrukturellen Befunde an diesem Untersuchungsgut tritt Metallimprägnation und Verfärbung bei sondenhartem Dentin ohne Sekundärkaries auf, obgleich regressive Strukturveränderungen unterschiedlicher Prägung sowie partiell demineralisierte Areale vorliegen.

Verfärbungen des Dentin können therapeutische Konsequenzen haben, werden sie doch zusammen mit der Dentinerweichung als Kriterium für die Exkavationstiefe bei kariösen Läsionen (FRANKE (1955), FUSAYAMA (1966)) herangezogen. Eine Abgrenzung unterschiedlicher Dentinverfärbungen von ihren zugrunde liegenden strukturellen Substraten wäre zweckdienlich. Kariöse Dentinverfärbungen, wie sie eventuell durch Bakterienfarbstoffe oder andere Pigmente (DEAKINS (1941)) in bräun-

lichen Farbtönen in Erscheinung treten, wurden schon von BLACK (1914) von metallischen Verfärbungen klar unterschieden. Metall-einpressungen (WITZEL (1899)) konnten elektronenmikroskopisch niemals gefunden werden und fallen als Verursachung von Verfärbungen somit weg.

Endogene Verfärbungen, zumeist als reversibel beschrieben, sollen bei Allgemeinerkrankungen, wie zum Beispiel Typhus oder Ikterus (SCHEFF (1924)), auftreten, spielen aber in unserem Zusammenhang keine wesentliche Rolle.

Als klinisches Kriterium bei dunklen Dentinverfärbungen unter Amalgamfüllungen zur Bestimmung eventueller sekundärer Kariesläsionen sollte die Härte gegenüber der Farbe vorgezogen werden, da sich gezeigt hat, daß sich ultrastrukturell bei starken Verfärbungen sondenharten Dentins zwar ausgeprägte partiell minder mineralisierte Zonen und regressive Veränderungen aber keine Sekundärkaries bzw. Bakterieninvasionen finden.

Seit WITZEL (1899) und BÖDECKER (1894) werden metallische Sulfidverbindungen wie Silbersulfid für Verfärbungen primär verantwortlich gemacht. Die in den von uns beobachteten stark dunkelgrau bis grauschwarz verfärbten Bezirken auftretenden hohen Zinkkonzentrationen, wie im Präparat 72, müssen nicht direkt für die Verfärbung verantwortlich sein, denn Zinkoxyde und Zinksulfide sind durch weiße Farbe im Gegensatz zu Zinnsulfid (braun) und Silbersulfid (schwarz).

Es könnten jedoch Metalle durch Diffusion entlang der Dentintubuli wie auch speziell durch interkristalline Diffusion zu mindermineralisierten Herden gelangen und dort, was auch für Zink gilt, in Spuren abweichender Wertigkeitsstufen als Fehlstellen im Kristallgitter der anorganischen Dentinphase eingeschlossen werden und dadurch dunklere Verfärbungen hervorrufen. Demgegenüber ist nicht auszuschließen, daß Spuren von nicht durch die Mikrosonde erfaßbaren Zinn- oder Silbergehalten in Sulfidform oder anderen Bindungen für die Verfärbungen verantwortlich sind. Dafür sprechen auch die diffus auslaufenden Verfärbungen. Es müssen aber auch, wenn diese Verfärbungen örtlich über die Zonen einer Signalanzeige für Metalle durch die Mikrosonde hinausreichen, ein optisches Durchscheinen der Verfärbung aus tieferen Lagen und Brechungserscheinungen im Dentin unter Umständen miteinbezogen werden.

Die Dentin-Ultrastruktur unter Amalgamfüllungen, die klinisch bei Sondenprüfung keine Erweichung durch Sekundärkaries erkennen läßt, zeigt ein stark variierendes vielfältiges Bild. Die Mikromorphologie entspricht dabei zum Teil Veränderungen, wie sie bei regressiven Vorgängen allgemein zu beobachten sind (AOYAMA et al. (1973), GUGGOLZ (1973), HÖHLING (1961), HÖHLING (1966), LENZ und GUGGOLZ (1974)) und wie sie im Zusammenhang mit kariösen Veränderungen im Ultrabereich (LENZ (1955 a,b,c), HÖHLING (1961), TAKUMA und KURAHASHI (1962), SYMONS (1970)) anzutreffen sind. Besonders im Bereich des sogenannten Karieskegels, von dem auch bei lege artis erfolgter Kariesentfernung Teile zurückbleiben, sind mindermineralisierte Areale zu erfassen, die im ultrastrukturellen Bereich Demineralisationserscheinungen auf-

weisen. Die im rasterelektronenmikroskopischen Bild zu beobachtende körnig-bröckelige Struktur der intertubulären und die stark variierenden, von der normalen peritubulären Formation (TAKUMA (1960), SCOTT et al. (1974)) abweichenden Gefüge, finden also auch ihren Ausdruck im Feinbau. Die Kristallite unterscheiden sich in solchen Fällen stärker in ihrer Größe, Form und Lage. Das Erscheinungsbild gleicht nicht einer eigentlichen Kariesläsion mit Strukturauflösung, sondern das Dentingefüge tritt noch hervor. Daneben finden sich aber auch regressive Veränderungen, die auf engstem Raum mit primären bzw. sekundären de- und remineralisierten Strukturen vorkommen. Diese sehr unterschiedliche strukturelle Prägung weist auf eine deutliche tubuläre Individualität (LENZ (1975)) hin, wie in Abbildung 6, 10 und 33 zu erkennen ist.

Die Ursache für die unterschiedliche strukturelle Morphologie wird in der Vielfalt der primären Karieseinwirkungen (MATHIS (1947)) gegeben sein, ebenso in den dadurch hervorgerufenen regressiven produktiven Veränderungen im Dentin - wie sie LENZ (1973) als Reaktion der Pulpa auf Irritation erläutert - und können ferner auch auf rein passiv ablaufenden Mineralisationsänderungen nach Verlust der Vitalität beruhen. Solche Mineralisationen, sowohl als regressive Reaktion der Odontoblasten (z.B. bei schubweisem Kariesverlauf) als auch als rein passiv. Mineralisationsvorgänge, scheinen Metallanreicherungen zu begünstigen.

Die übereinstimmenden Befunde bei den Analysenergebnissen des vorgelegten Untersuchungsmaterials lassen den Schluß zu, daß im Ultrabe-

reich erkennbare graduell und qualitativ variierende, charakteristische partiell demineralisierte Dentinstrukturen in kavitätenbodennahen Zonen Metallimprägnation auftritt, die bei Kontrollzähnen nicht zu beobachten ist. Erhöhte Zink bzw. Zinneinlagerungen finden sich in solchen stärker demineralisierten calciumarmen umgebauten Dentinarealen.

Grundsätzlich können Strukturgrenzen, wie sie sowohl an Schliffpräparaten durch Stufenbildung wie auch teils einer Verfärbungsgrenze benachbart erkennbar sind, als beschriebene Konzentrationsgrenze für Metalle in Erscheinung treten, die in Abb. 24 und 25 deutlich ersichtlich ist. Entlang solcher Grenzen sind durch produktive Leistung der Odontoblasten Strukturbarrieren denkbar, die als Schutzwall der Pulpa vor Schadstoffen gesehen werden können. Unterhalb dieser Grenzen, an denen es bis zur Obliteration der Tubuli kommen kann, entspricht das Dentinegewebe wieder eher dem Normalbild. Einzelne Kanäle scheinen auch offen diese Barrieren zu durchziehen. Dies unterstreicht, daß allgemein das Erscheinungsbild einzelner Kanäle innerhalb eines Bereiches von wenigen μm sehr unterschiedlich sein kann.

Jene Stufenbildung am Übergang von härterem zu weicherem (jedoch klinisch sondenhartem) Dentin, wie sie z.B. im Zahnpräparat 72 nach Schleif- und Poliervorgängen auftritt, spricht im Gesamtbild für einen langsam ablaufenden Umbau und Demineralisationsprozess, ist also einem Karieseinfluß vor der Kavitätenpräparation und

Amalgamfüllung zuzuschreiben.

Im metallangereicherten Dentin finden sich neben Arealen mit deutlich verringertem Calciumgehalt auch primär regressive Strukturumbauten. Daraus resultierende Konsequenzen für die Diffusion von Metallen ins Dentin bzw. für den Einlagerungsmodus der angereicherten Metalle scheinen nicht geklärt. Die experimentellen Versuche von KUROSAKI und FUSAYAMA (1973) zeigen, daß im Vergleich zu nicht dekalzifizierten Dentinabschnitten eine Metallimprägnation nicht bzw. nur in geringen nicht mikrosondenmäßig erfaßbaren Mengen stattfindet. Dies wiederum könnte bedeuten, daß nicht so sehr die tubuläre Struktur als Passageweg ausschlaggebend für eine Einlagerung im Dentin ist, als vielmehr kristallchemische Vorgänge (De- bzw. Remineralisationen), also Veränderungen im Feinbau. Diffusionsvorgänge im biologischen Milieu über lange Zeiträume, wie sie bei der Metaldiffusion aus Füllungsmaterialien ins Dentin zu erwarten sind, lassen sich in ihrer Komplexität in in-vitro-Versuchen kaum simulieren. Man ist somit bei solchen Versuchen auf klinisches Material und auf das biologische Experiment und vorläufig auf Hypothesen und Analogieschlüsse aus allgemein kristallchemischen Vorgängen angewiesen.

Über mögliche Bindungsformen und Wechselbeziehungen von Zinn und Zink, das angereichert unter Amalgamfüllungen vorkommt, mit organischen oder vielmehr anorganischen Dentinphasen, finden sich in der Literatur keine konkreten Hinweise. Jedoch sowohl die veränderte Ultrastruktur wie auch der verminderte Calciumgehalt in Dentinbezirken mit bevor-

zugter Zinn- bzw. Zinkanreicherungen sprechen wie erwartet für intensive Umbauvorgänge in diesen Regionen. Bei solchen auftretenden Transformations- und Chelationsreaktionen in der mineralischen Dentinphase sind eine Beteiligung und Einbeziehung der resorbierten Metalle anzunehmen.

Das Schicksal von einigen abgelagerten Metallen, wie z.B. Arsen und Blei, in den Zahnhartgeweben ist vom histologisch-analytischen Standpunkt eingehender behandelt worden (WANDELT (1966), NEWSELY (1973)). Die Frage jedoch, inwieweit Zinn- und Zinksalze sich bei den Fällungsreaktionen der Calciumphosphate während der Mineralisationsvorgänge auswirken, scheint in seinen Details weitgehend offen. Von Bedeutung wäre in diesem Zusammenhang aber ein differenziertes Wissen über Existenz- und Umwandlungsbedingungen der Übergangsphasen zwischen den Endgliedern mit Calcium und Zinn-, Zink- bzw. Phosphor z.B. bei Copräzipitation und Metallanreicherungen. Anhaltspunkte für den Lagerungsmodus von Zinn und Zink in der anorganischen Dentinphase, speziell in unterschiedlich minder mineralisierten Strukturen könnten in Analogie zu den genannten kristallchemischen Ausführungen (NEWSELY (1966), (1972)) und besonders zu der Erörterung über Metallresorptionen der Hartgewebe (NEWSELY (1973)) gefolgert werden.

6. Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich in Synopsis mit Ultrastruktur, Metallimprägnation und Verfärbung menschlichen Dentins unter Silber-Zinn-Amalgamfüllungen. Es wurden 87 amalgamgefüllte und 8 Kontroll-Zähne speziell präpariert und aus 7 ausgewählten amalgamgefüllten Zähnen - mit längerer Liegezeit - Dentinbezirke zwischen Kavitätenboden und Pulpendach für folgende komplexe Untersuchungsgänge herangezogen:

- Rasterelektronenmikroskopische Oberflächenstrukturuntersuchung an Bruchflächen
- Transmissionselektronenmikroskopische Abklärung von Ultrastrukturen an Dünnschnitten
- Multielementbestimmungen an Bruchflächen (Punkt-, Linien-Analysen) mittels Mikrosonden unter simultaner rasterelektronenmikroskopischer Topographieerfassung
- Punkt-, Linien- und Flächenverteilungsanalysen vor allem für Zink, Zinn, Calcium, Silber, Quecksilber und Phosphor an Schliffpräparaten analoger Dentinstellen mittels energiedispersiven und wellenlängendispersiven Röntgenanalysatoren (Mikrosonden) unter Einbeziehung der Oberflächengestalt im rasterelektronenmikroskopischen Bild.

Von den mit diesen technischen Geräten erhobenen umfangreichen Befunden sind folgende Ergebnisse unter Einbeziehung der makroskopisch

erfaßten Verfärbung hervorzuheben:

1. Verfärbte Dentinbezirke unmittelbar unter dem Kavitätenboden zeigen hauptsächlich Zink- und Zinn-Metallanreicherungen mit unterschiedlicher Ausdehnung pulpenwärts. Anzeigen für Zink reichen von 0 bis 700 μm Tiefe, Zinn kommt in geringeren Tiefen bis etwa 400 μm vor. Vereinzelte Quecksilber- und andernorts schwache Silberanzeigen liegen an der Grenze des Auflösungsvermögens der Sonde, wodurch keine klare Abgrenzung gegenüber Untergrundsignalen möglich ist. Präparatorische Beeinflussungen bezüglich der Sondensignale werden diskutiert.

2. Ausgeprägte Zink- und Zinnanreicherungen treten bevorzugt in kavitätenbodennahen Bereichen auf, die ebenfalls strukturelle Dentinveränderungen aufweisen. Solche Strukturveränderungen sind in intra-, peri- und intertubulären Zonen sowohl raster- wie auch transmissionselektronenmikroskopisch in großer Variabilität quantitativ und qualitativ - mit lokalen Unterschieden oft innerhalb weniger μm - erfaßbar:

Hierbei sind zwei Formen zu unterscheiden:

- a) Regressive Veränderungen treten entlang der Dentinkanälchen in Form von peritubulärem Dentin auf, die von der Einengung der Kanallumina bis zur vollständigen Obliteration (sklerotisches Dentin) reichen können.
- b) Es kommen Veränderungen des Dentins durch fortschreitende Karies (Karieskegel) im Sinne von Demineralisationsvorgängen vor, die von leichten partiellen Demineralisationen bis zur generellen Auflösung der gesamten Struktur führen. Es können

hierbei sowohl die intertubuläre Grundsubstanz als auch die Kanäle einschließlich ihrer regressiven Veränderungen betroffen werden.

Beobachtet wurden insbesondere: partielle und generelle Strukturauflösung der peritubulären Matrix, intratubuläre kristalline Auswüchse, Verlust von Querkanalöffnungen, Auflagerungen an der Lumenwand, beträchtliche Schwankungen der Lumenweite, kristalline Ausgüsse der Lumina, weitreichender Verlust des Strukturgefüges, partiell demineralisiertes intertubuläres Gefüge, unregelmäßige Bruchgefüge, Kristallite in unregelmäßiger Lagerung, Form und Größe.

4. Metallanzeigen im Dentin ohne strukturelle Veränderungen durch Demineralisation wurden nicht beobachtet.
5. Zinkhaltige Unterfüllungen - die zumeist den Kavitätenboden nicht zur Gänze decken - über veränderter Dentinmatrix können tiefreichende Zinkanreicherungen im Dentin verursachen; es finden sich aber auch geringer pulpenwärts reichende Zinnanzeigen, die in kavitätenbodennahen Bereichen oft evident sind. Diese Metallvorkommen sind nicht morphologisch sondern nur mit fluoreszenzanalytischen Methoden (z.B. mittels Mikrosonden) erfassbar.
6. Lokale Herde von Metallanreicherungen (Zinn und Zink) in stark demineralisierten Arealen sind zum Teil von sklerotisierten Kanälen begrenzt, es scheinen jedoch auch in diesen Zonen ($\varnothing$ ca. 10 bis 80 μ m) zahlreiche offene Lumina vorzuliegen.
7. Der Lagerungsmodus der Metalle ist überwiegend homogen über die gesamte stark veränderte Dentinmasse verteilt, abgesehen von

einzelnen beschriebenen Herden. Spezielle Anreicherungen in den stark demineralisierten peritubulären Zonen - soweit solche noch hervortreten - sowie in der atubulären Dentinmasse, sind keine zu beobachten. Intratubuläre Anreicherungen treten ebenfalls nicht auf.

8. Der Calciumgehalt der peritubulären Zonen schwankt geringfügig.

Es treten teils erhöhte Calciumanzeigen im Vergleich mit den intertubulären Zonen und teils verminderte in Erscheinung. Die Abnahme geht mit starken Demineralisationserscheinungen einher. Einzelne sklerotisierte, peritubuläre Formationen zeigen geringe Calciumanreicherung im Vergleich zur intertubulären Dentinmasse.

9. Makroskopisch im Auflicht verfärbt erscheinende Dentinbezirke -

besonders an diffus auslaufenden Metallimprägnationen - scheinen pulpenwärts die Metallanzeigen zu überschreiten. Dabei sind Interferenz- und Brechungerscheinungen sowie Farbeinlagerungen tiefer liegender Schichten zu beachten, denn die elektronischen Signale für Metallgehalte rühren nur aus oberflächlichen Bezirken her.

Ebenfalls ist die begrenzte Auflösung der Sonde zu berücksichtigen.

Ferner werden ätiologische Aspekte der Metallimprägnation und Verfärbung, mögliche Beziehungen der Metalle zu Dentinphasen aus mikromorphologischer und kristallchemischer Sicht, sowie die Problematik quantitativer und qualitativer zerstörungsfreier Mikrosondenanalysen diskutiert.

7. Schriftenverzeichnis

- ADOLPH, W.: Elektronenmikroskopische Untersuchungen über den Einfluß von Medikamenten auf die Struktur beschliffener Dentinoberflächen von Zähnen mit lebender, gesunder Pulpa.
Dtsch. zahnärztl. Z. 13, 816 - 825 (1958).
- AOYAMA, I., M.KATAGIRI, and S.SUGA: Ultrastructure of sound and sclerosed dentinal tubules viewed by scanning electron microscopy.
Nippon dent. college, annual publ., Vol. 8, 1973, Tokyo and Niigata.
- APPLEBAUM, E.: Lymph channels in dentine and enamel stained by amalgam.
J. dent. Res. 9, 487 - 502 (1929).
- BABENDERERDE, E., M.HELD und S.UNTERSPEAN: Untersuchungen zur Diffusion des Quecksilbers aus Silber-Zinn-Amalgam-Füllungen mittels Hg²⁰³.
Dtsch. Stomat. 20, 343 - 348 (1970).
- BERGENHOLZ, A., B.HEDEGARD, and R.SÖREMARK: Studies of the transport of metal ions from gold inlays into environmental tissues.
Acta odont. scand. 23, 135 - 146 (1965).
- BERSIN, T.: Biochemie der Mineral- und Spurenelemente.
Akad. Verlagsgesellschaft, Frankfurt/Main, 1963, S. 282.
- BLACK, G.V.: Konservierende Zahnheilkunde.
Hermann Meusser, Berlin 1914, Bd. 2, S.371 - 372.
- BÖDECKER, C.F.: Anatomy and pathology of the teeth.
S.S. Withe Dental Mfg. Co. Philadelphia 1894, S.87.
- BÖDECKER, C.F., and E.APPLEBAUM: Effect of filling materials upon teeth.
Dent. Cosmos 72, 1001 - 1014 (1930).
- BÖHLE, R.: Verfärbung der Zähne und ihre Therapie.
Med.Diss. Köln 1921.
- CALONIUS, P., and A.VISAPÄÄ: The inorganic constituents of human teeth and bone examined by X-ray emission spectrography.
Arch. oral Biol. 10, 9 - 19 (1965).
- D'AMBROSIO, L.: Spektralanalytische Untersuchungen der Diffusion von Amalgam im Dentin.
Med. Diss. München 1950.

- DEAKENS, M.: The isolation of a melanin-like substance from carious organic matrix of human dentin.
J. dent. Res. 20, 39-41 (1941).
- ENDERLI, K.: Der histochemische und mikroskopische Nachweis von Amalgamteilchen im Dentinegewebe (methodischer Beitrag).
Med. Diss. Zürich 1967.
- FAIN, Ch.: The effect of a cavity liner on the staining of dentin.
J. dent. child., 28, 171 - 176, 1961.
- FEILER, E.: Die Transparenz des Zahnbeins.
Z. Stomat. 21, 595 - 614 (1923).
- FIELDS, L., and G.CHARLES: A spectrographic investigation of trace elements in human teeth.
Proc. Okla. Acad. Science 31, 47 - 48 (1950).
- FRANK, R.M., M.CAPITANT, and J.GONI: Electron probe studies of human enamel.
J. dent. Res. Supp. 3, 45, 672 - 682 (1966).
- FRANKE, G.: Dürfen wir bei der Kavitätenpräparation am Boden der Kavität kariöses Dentin zurücklassen?
Dtsch. zahnärztl. Z. 10, 1890 - 1895 (1955).
- FRAZIER, P.: Electron probe analyses of human teeth Ca/P ratios in incipient carious lesions.
Arch. oral Biol. 12, 25 - 33 (1967).
- FRYKHOLM, K., and E.ODEBLAD: Studies on the penetration of mercury through the dental hard tissues, using Hg²⁰³ in silver amalgam fillings.
Acta odont. scand. 13, 157 - 165 (1955).
- FUSAYAMA, T., K.OKUSE, and H.HOSODA: Relationship between hardness, discoloration, and microbial invasion in carious dentin.
J. dent. Res. 45, 1033 - 1046 (1966).
- FUSAYAMA, T., and K.HAYASHI: Microstructure of amalgam surfaces.
J. dent. Res. 49, 733 - 741 (1970).
- GOING, R., and M. MASSLER: Influence of cavity liners under amalgam restorations on penetration by radioactive isotopes.
J. prosth. Dent. 11, 298 - 311 (1961).

- GUGGOLZ, B.: Elektronenmikroskopische Untersuchungen des Dentins von bleibenden menschlichen Zähnen mit Abrasionen und keilförmigen Defekten.
Med. Diss. Berlin 1973.
- HALS, E., and A. HALS: Electron probe microanalyses of secondary carious lesions associated with silver amalgam fillings.
Acta odont. Scand. 1975 (a) (in press).
- HALS, A., and E. HALS: Electron probe microanalyses of secondary carious lesions adjacent to silicate fillings.
Proc. ORCA, 1975 (b), Wien.
- HALS, A.: Metals in dentinal tubules beneath amalgam fillings in human teeth.
Arch. oral Biol. 20, 87 - 88 (1975).
- HEILMEIER, E.: Zahnverfärbungen und ihre Behandlung.
Med. Diss. Erlangen 1924.
- HERTING, H. C.: Elektronenmikroskopische Beobachtungen an kariösem Dentin.
Dtsch. zahnärztl. Z. 20, 704 - 716 (1965).
- HEUSER, F.: Das Verhalten des Zahnbeins unter Füllungen.
Vierteljahresschr. Zahnheilk. 49, 283 - 298 (1933).
- HOFFMANN, J.: Pathologie und Therapie der Verfärbung menschlicher Zähne.
Med. Diss. Frankfurt 1923.
- HÖHLING, H.-J.: Elektronenmikroskopische Untersuchungen am gesunden und kariösen Dentin mit Hilfe der Abdruckmethode und der Schnittmethode an kompakter, nicht entmineralisierter Substanz.
Z. Zellforschg. 53, 192 - 200 (1961).
- HÖHLING, H.-J.: Die Bauelemente von Zahnschmelz und Dentin aus morphologischer, chemischer und struktureller Sicht.
Carl Hanser, München 1966, S. 78 - 100.
- ISAAC, S., and F. BRUDEVOLD: Discoloration of teeth by metallic ions.
J. dent. Res. 36, 753 - 758 (1957).
- KATO, Y.: Studies on the discoloration of dental hard tissues by amalgam fillings.
Shigaku, 57, 419 - 455 (1969).

KATO, Y., M. NAKAMURA, S. KOU, M. MATSUSHITA, W. HONDA, and S. KATSUYAMA:

Silver amalgam containing stannous fluoride, with special reference on the penetration of fluoride into dentin and its clinical prolonged observations.

Jap. J. conserv. Dent. 17, 120 - 131 (1974).

KATSUYAMA, S., Y. KATO, H. TANAKE, Y. KAMETA, K. YASUDA, K. ISHIKAWA,

T. KUROSAKI, R. AYASA, S. SUZUKI, and J. OKAMURA: Studies on amalgam penetration to dental tissues by electron microprobe analyser.

(1) Studies on amalgam penetration to dentin.

Jap. J. Conserv. Dent. 10, 231 - 241 (1968).

KÜHLER, E.: Experimentelle Untersuchungen über die Ausbreitung von Fremdstoffen in den menschlichen Zahnhartgeweben.

Dtsch. zahnärztl. Z. 20, 717 - 735 (1965).

KRAUS, G.: Diffusion von Amalgam im Dentin.

Med. Diss. München 1949.

KROPP, K.: Amalgame.

In Eichner, K.: Leitfaden zahnärztlicher Werkstoffkunde und ihrer Verarbeitung.

3. Aufl., Hüthig Verlag, Heidelberg 1974, S. 384.

KUROSAKI, N., and T. FUSAYAMA: Penetration of elements from amalgam into dentin.

J. dent. Res. 52, 309 - 317 (1973).

LENZ, H.: Elektronenmikroskopischer Nachweis der Dentinveränderungen durch Karies.

Dtsch. Zahn-, Mund- u. Kieferheilk. 22, 24 - 33 (1955) (a).

LENZ, H.: Elektronenmikroskopische Untersuchungen am normalen und kariösen Dentin.

Berl. Gesundheitsblatt 19, 498 - 502 (1955) (b).

LENZ, H.: Elektronenmikroskopische Untersuchungen über Strukturen des normalen Dentins und deren Veränderungen durch Karieseinwirkung.

Med. Diss. Berlin 1955 (c).

LENZ, H.: Elektronenmikroskopische Untersuchungen über regressive und produktive Veränderungen im Dentin als Reaktion der Pulpa auf Irritation.

Vortragsmanuskript - II. Int. week for dentistry, Istanbul, 1973.

- LENZ, H., and B. GUGGOLZ: Electronmicroscopic investigations on wedge shaped defects and abraded areas of dentin.
J. dent. Res. 53, 738 (1974).
- LENZ, H.: Forschungsvorhaben - Dentin-Pulpa.
Abschlußbericht an die DFG, 1975.
- LINDEN van der, L.W., and J. AKEN: The origin of localized increased radiopacity in the dentin.
Oral Surg. 35, 862 - 871 (1973).
- MASSLER, M., and T. BARBER: Action of amalgam on dentin.
J. Amer. dent. Ass. 47, 415 - 422 (1953).
- MATEER, R., and C. REITZ: Korrosion of amalgam restorations.
J. dent. Res. 49, 399 - 407 (1970).
- MATHIS, H.: Caries Dentium.
Urban-Schwarzenberg, Wien 1947.
- MCCURDY, M., L. SWARTZ, R. PHILLIPS, and B. RHODES: A comparison of in vivo and in vitro microleakage of dental restorations.
Quarterly dent. Res. 8, 66 (1974).
- MISCH, J.: Lehrbuch der Grenzgebiete der Medizin und Zahnheilkunde.
F.C.W. Vogel, Leipzig 1922, Bd. 1, 2. Auflage, S. 23 - 25.
- MOCKE, W.: Untersuchungen durch Neutronenaktivierung über den diffundierten Elementgehalt von Zähnen mit Amalgamfüllungen.
Med. Diss. Berlin 1966.
- MOCKE, W.: Untersuchungen durch Neutronenaktivierung über den diffundierten Elementgehalt von Zähnen mit Amalgamfüllungen.
Dtsch. zahnärztl. Z. 27, 657 - 664 (1971).
- NAUJOKS, R., B. RANKE und H. RUST: Zur Frage der Penetration des Dentins und der Beeinflussung der Glykolyse im Speichel durch Quecksilber aus Silberamalgamfüllungen.
Dtsch. zahnärztl. Z. 18, 459 - 467 (1963).
- NELSEN, R., R. WOLCOTT, and G. PAFFENBARGER: Fluid exchange at the margins of dental restorations.
Amer. dent. Ass. 44, 288 - 295 (1952).
- NEWESELY, H.: Mechanism and action of trace elements in the mineralisation of dental hard tissues.
Zyma SA Nyon Switzerland, 1972.

NEWSELY, H.: Kristallchemische und mikromorphologische Untersuchungen der schwer löslichen Calciumphosphate.

Fortsschr.chem.Forsch. 5, 688 - 746 (1966).

NEWSELY, H.: Kristallchemische Bemerkungen zur Blei- und Arsenresorption der Hartgewebe.

Vortrag gehalten bei der Jahrestagung der Arbeitsgemeinschaft für Grundlagenforschung in der Dtsch.Ges.f.Zahn-, Mund- und Kieferheilk., Tübingen, 1973.

NIELSEN, F., and J.SANDSTEAD: Are nickel, vanadium, silicon, fluorine, and tin essential for man? A review.

Amerk.J.clin.Nutrit. 27, 515 - 516 (1974).

NIXON, G., G.PAXTON, and H.SMITH: Estimation of mercury in human enamel by activations analysis.

J. dent. Res. 45, 654 - 656 (1965).

PHILLIPS, R.: Die Bedeutung elektrischer Ströme in der Mundhöhle.

Dtsch. zahnärztl. Z. 12, 1222 - 1226, (1957).

RETIEF, D., P.CLEATON-JONES, J. TURKSTRA, and W.WET: The quantitative analysis of sixteen elements in normal human enamel and dentine by neutron activation analysis and high - resolution gamma-spectrometry.

Arch. oral Biol. 16, 1257 - 1267 (1971).

ROSSBERG, W.: Histochemischer Nachweis von Zinn im Zahnhartgewebe bei experimenteller Zinnfütterung.

Med. Diss. Leipzig 1937.

RYGE, G., J.MOFFETT, and A.BARKOW: Microstructural observations and X-ray diffraction studies of silver-tin amalgams.

J. dent. Res. 32, 152 - 167 (1953).

SCOTT, D., J.SIMMELINK, and V.NYGGGAARD: Structural aspects of dental caries.

J. dent. res. 53, 165 - 178 (1974).

SCHEFF, J.: Handbuch der Zahnheilkunde.

Hölder-Pichler-Tempsky A.G., Wien-Leipzig 1924, Bd.2, S.174, 713 ff.

SCHOONOVER, I., and W.SOUNDER: Corrosion of dental alloys.

J.Amer. dent. Ass. 28, 1278 - 1291 (1941).

- SCHRIEVER, W., and L.DIAMOND: Electromotive forces and electric currents by metallic dental fillings.
J. dent. Res. 31, 205 - 229 (1951).
- SCHWARZE, H.: Über das Verhalten von Amalgamfüllungen im Munde.
Med. Diss. München 1951.
- SHIMOOKA, S.: On the penetration of silver nitrate and ammoniacal silver fluoride into the microstructure of the sound dentin.
Odontology 59, 534 - 566 (1972). Aus: Nippon dental College, annual publ. Tokyo, vol. 7, 1971 - 1972.
- SÖREMARK, R., and D.SAMSAHL: Gammy-ray spectrometric analyses of elements in normal human dentin.
J. dent. Res. 41, 603 - 606 (1962).
- SÖREMARK, R., K.WING, K.OLSSON, J.GOLGIN: Penetration of metallic ions from restorations into teeth.
J. Prosth. Dent. 20, 531 - 540 (1968).
- SPRENG, M.: Allergieprobleme im Zusammenhang mit zahnärztlichen Fremdstoffen im Munde.
Allergie und Asthma 1, 99 - 104 (1955).
- SPRENG, A.: Allergie und Zahnmedizin.
Ambrosius Barth, Leipzig 1963, S. 84 ff., 2.Aufl.
- SPRETER von KREUDENSTEIN, Th.: Randspaltverhältnisse bei Amalgam- und Zementfüllungen.
Zahnärztl. Prax. 9, 49 - 50 (1958).
- STRASSBURG, M. und F.SCHÜBEL: Generalisierte allergische Reaktion durch Silberamalgamfüllungen.
Dtsch. zahnärztl. Z. 22, 3 - 9 (1967).
- SUGA, S.: Fluorine distribution in sound, carious and developing teeth, revealed by electron microprobe analysis.
Nippon dent. College, annual publ. vol. 8, 1973, Tokyo and Niigata.
- SUTFIN, L. and R. OGILCIE: Scanning electron microscopy and energy dispersion microanalysis of metallographically polished dental amalgam surfaces.
J. dent. Res. 51, 1048 - 1054 (1972).

- ŠVEJDA, J.: Über die Struktur der pulpodentinalen Grenze im Raster-
elektronenmikroskop.
Dtsch. Zahn-, Mund- und Kieferheilk. 63, 1 - 14 (1975).
- SWARTZ, M., R. PHILLIPS, and M. EL TANNIR: Tarnish of certain dental
alloys.
J. dent. Res. 37, 837 - 847 (1958).
- SYMONS, N.: Electron microscopic studies of the tubules in human
cariou dentine.
Arch. oral Biol. 15, 239 - 251 (1970).
- TAKUMA, S.: Electron microscopy of the structure around the dentinal
tubule.
J. dent. Res. 39, 973 - 981 (1960).
- TAKUMA, S., and Y. KURAHASHI: Electron microscopy of various zones
in a carious lesion in human dentine.
Arch. oral Biol. 7, 439 - 453 (1962).
- TAKUMA, S., J. OGIWARA, and J. SUZUKI: Electron-probe and electron
microscope studies of carious dentinal lesions with remineralized
surface layer.
Caries Res. 9, 278 - 285 (1975).
- THOMMEN, D.: Amalgam-Invasion aus der Kavität in das Dentin- und
Pulpa-Gewebe.
Med. Diss. Zürich 1972.
- UHLIG, H.: Wanderung von Amalgamteilchen durch das Dentin vitaler
Zähne.
Med. Diss. Leipzig 1936.
- VAHRENKAMP, H.: Metalle in Lebensprozessen.
Chemie in unserer Zeit, 7, 97 - 105 (1973).
- WAGNER, E.: Beitrag zur Klärung des Korrosionsverhaltens der Silber-
Zinn-Amalgame.
Dtsch. zahnärztl. Z. 17, 99 - 106 (1962).
- WANDELT, S.: Untersuchungen über den Verbleib des bei Pulpdevitali-
sation angewandten Arsens.
Dtsch. zahnärztl. Z. 21, 183 - 190 (1966).
- WEI, S., and H. INGRAM: Analyses of the amalgam-tooth interface using
the electron microprobe.
J. dent. Res. 48, 317 - 320 (1969).

WENDEBORN, R.: Metallablagerungen im Zahnhartgewebe amalgamgefüllter Zähne.

Med. Diss. Leipzig 1934.

WERNER, U.: Verteilung und Lokalisation abgewanderter Amalgamteilchen im Zahnhartgewebe.

Med. Diss. Leipzig 1935.

WITZEL, A.: Das Füllen der Zähne mit Amalgam.

Berlinische Verlagsanstalt, Berlin 1899, S. 233 - 254.

WÜTHRICH, R.: Ätiologische Probleme in der Multiple-Sklerose-Forschung.

Schweiz. Mschr. Zahnheilk. 76, 793 - 802 (1966).

ZETTEL, G.: Verfärbungen der Zähne und ihre Behandlung.

Med. Diss. Halle 1922.

8. Abkürzungsverzeichnis

$$\text{\AA} = \text{\AA ngström} = 1 \text{\AA} = 10^{-7} \text{ mm} = \frac{1}{10\,000\,000} \text{ mm}$$

Abb. = Abbildung

Ag = Silber

Ca = Calcium

eV = Elektronenvolt

gm = Gramm

Hg = Quecksilber

KB = Kavitätenboden

kV = Kilovolt

mm = Millimeter

$$\mu\text{m} = 10^{-3} \text{ mm} = \frac{1}{1\,000} \text{ mm}$$

OV = Orig. Vergr. = Originalvergrößerung

PD = Pulpendach

REM = Rasterelektronenmikroskop

Sn = Zinn

TEM = Transmissionselektronenmikroskop

Zn = Zink

Zu großem Dank bin ich den Professoren Dr. H. NEWSELY und Dr. H. LENZ, Institut für Klinisch-Theoretische Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde, Freie Universität Berlin, für die Betreuung, eingehende Diskussionen und stete Hilfsbereitschaft im Zusammenhang mit der vorliegenden Arbeit verpflichtet.

Ferner gilt mein besonderer Dank Prof. Dr. H. WUNDERER (Vorstand der Zahn- und Kieferklinik, Universität Innsbruck), Prof. Dr. J. KLIMA (Laboratorium für Elektronenmikroskopie, Universität Innsbruck), Prof. Dr. mont. R. MITSCHKE (Vorstand der Lehrkanzel für Metallkunde und Werkstoffprüfung, Montanistische Hochschule Leoben) und Prof. Dr. mont. F. JEGLITSCH (Lehrkanzel für Metallkunde und Werkstoffprüfung der Montanistischen Hochschule Leoben) für ihre großzügige, persönliche Unterstützung, ohne die die rasterelektronenmikroskopischen und mikroanalytischen Elektronensonden-Untersuchungen nicht möglich gewesen wären.

Herrn Prokurist F.O.BRANDL, ÖGUSSA-Dental, Wien, sei für die freundliche Bereitstellung von Versuchsmaterialien und die Unterstützung der Drucklegung gedankt.

Lebenslauf

Am 8.3.1945 wurde ich, Bernt Rossiwall, in Mariazell, Österreich, als Sohn des Dr. med. univ. Franz Rossiwall und seiner Ehefrau Maria Rossiwall, geb. Wallentin, geboren.

Nach vier Jahren Volks- und einem Jahr Hauptschule in Saalfelden besuchte ich sieben Jahre das Gymnasium in St. Johann/Tirol.

Die siebente Klasse übersprang ich, 1964 legte ich meine Matura an dieser Schule ab. Im Schuljahr 1962/63 weilte ich als Stipendiat des American Field Service in den USA (Tulsa, Oklahoma) und erhielt dort das Abschluszeugnis einer High School.

Ab Wintersemester (WS) 1964 studierte ich Medizin in Innsbruck, unterbrochen durch ein klinisches Semester in Wien; im Sommer 1967 absolvierte ich Studien am Hillcrest Medical Center in Tulsa, USA.

Am 13.4.1970 schloß ich das Medizinstudium im 11. Semester mit der Promotion zum Dr. med. univ. in Innsbruck ab.

Im WS 1970 begann ich mit der Facharztausbildung in der Zahn- und Kieferklinik der Universität Innsbruck, am 3.7.1972 erwarb ich die Qualifikation eines Facharztes für Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde.

Während der Ausbildungszeit ermöglichte mir das Bundesministerium für Wissenschaft und Forschung einen zweimonatigen Fortbildungsaufenthalt in den USA. Im WS 1972 studierte ich Psychologie in Innsbruck und war als wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Zahn- und Kieferklinik der Universität Innsbruck tätig.

Im Februar/März 1973 verbrachte ich einen erneuten Fortbildungs-

aufenthalt in den USA mit Unterstützung des Vorstandes der Zahn- und Kieferklinik der Universität Innsbruck, Prof.Dr.H. Wunderer, und des Bundesministeriums für Wissenschaft und Forschung.

Im Dezember 1973 wurde mir der "Wissenschaftliche Förderungspreis der Bundesfachgruppe für Zahnheilkunde der Österreichischen Ärztekammer" zuerkannt.

Im Sommersemester (SS) 1973, WS 1973/74 und SS 1975 war ich Gasthörer im Fachbereich 7 (Zahn-, Mund- und Kieferheilkunde) der Freien Universität Berlin.

Seit Mai 1973 arbeite ich als Assistenzarzt an der kieferorthopädischen Abteilung der Zahn- und Kieferklinik der Universität Innsbruck.

